

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À CHICOUTIMI

UNE GESTION STRATÉGIQUE DES BIOSOLIDES PAPETIERS POUR LUTTER
CONTRE LES CHANGEMENTS CLIMATIQUES : L'ÉPANDAGE AGRICOLE
PRODUIT-IL MOINS D'ÉMISSIONS DE GAZ À EFFET DE SERRE QUE
L'ENFOUISSEMENT?

PAR
CATHERINE LEMAY BÉLISLE
B. Sc. A. (FORESTERIE)
Éco-conseillère diplômée©

MÉMOIRE PRÉSENTÉ
À L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À CHICOUTIMI
COMME EXIGENCE PARTIELLE
DE LA MAÎTRISE EN RESSOURCES RENOUVELABLES

AOÛT 2016

RESUME

Les biosolides papetiers (BP) sont des matières organiques résiduelles générées lors du traitement des eaux de procédés de l'industrie des pâtes et papiers. Cette industrie génère près du quart des matières organiques résiduelles au Québec. Le gouvernement du Québec vise l'interdiction de l'enfouissement de la matière organique d'ici 2020 et la réduction des émissions de gaz à effet de serre (GES) de 20% par rapport au niveau de 1990, ce qui affectera probablement le portrait de gestion des BP. Or, les émissions de GES des différents modes de la gestion des BP sont peu documentées dans la littérature scientifique, ce qui rend incertain l'impact des changements de pratiques sur le bilan de l'industrie papetière. L'objectif de cette étude est de quantifier les émissions de GES provenant de deux modes de gestion des BP : l'enfouissement et l'épandage agricole. Ces informations contribueront à produire des bilans comparatifs d'émissions de GES de fin de vie, « de la barrière au tombeau » (*gate to grave*), soit des outils d'aide à la décision pour réaliser une gestion responsable des BP dans le cadre de la lutte aux changements climatiques.

L'étude a été réalisée à la ferme expérimentale du collège d'Alma, dans la région du Saguenay-Lac-Saint-Jean (Québec, Canada). Les émissions de l'enfouissement de BP primaires et de BP mixtes ont été mesurées à l'échelle pilote dans des fosses aménagées qui ont été suivies au cours de deux saisons consécutives (2013-2014) sans couvert nival. Les émissions de l'épandage agricole de BP ont été mesurées sur un sol à texture fine où les apports en azote fournis par des BP mixtes substituaient les apports d'azote d'un engrais minéral dans les proportions suivantes : témoin, 0%, 25%, 50%, 75% et 100%. Les doses d'azote appliquées respectaient les recommandations agronomiques locales de 120 kg N ha⁻¹ disponible pour la culture du blé Touran (*Triticum aestivum* var. Touran). Deux dispositifs d'épandage agricole ont été aménagés et suivis au cours d'une saison sans couvert nival (2013 et 2014) pour prendre en compte la variabilité des conditions saisonnières. Les émissions de protoxyde d'azote (N₂O), de méthane (CH₄) et de dioxyde de carbone (CO₂) ont été mesurées par la méthode de chambres statiques fermées, plus de 25 fois par saison. Des suivis des concentrations d'azote minéral, de pH et de contenu en eau

dans les BP et dans les sols ont été réalisés, ainsi qu'un suivi du rendement et du prélèvement d'azote de la culture.

D'une part, l'enfouissement des BP mixtes a émis davantage de GES ($0,22 \pm 0,02$ t éq CO₂ t⁻¹ BP secs) que l'enfouissement de BP primaires ($0,004 \pm 0,001$ t éq CO₂ t⁻¹ BP secs) pour la période de suivi de deux ans. Les émissions mesurées des BP mixtes étaient aussi principalement sous forme de N₂O ($0,152 \pm 0,009$ t éq CO₂ t⁻¹ BP secs), alors que les émissions de N₂O des BP primaires étaient négligeables. D'autre part, les émissions de N₂O de surface de la fertilisation agricole avec de l'engrais minéral ($4,3 \pm 0,7$ kg N₂O-N ha⁻¹) étaient moindres que celles des BP (100% BP; $11,2 \pm 1,0$ kg N₂O-N ha⁻¹) et elles augmentaient avec la substitution progressive de l'engrais minéral par les BP. Les émissions de N₂O des traitements de fertilisation agricole ont été significativement corrélées avec l'exposition aux nitrates en 2014 et avec les émissions cumulées de CO₂ en 2013 et en 2014. Les émissions de N₂O au rendement de blé ont aussi été négativement corrélées avec le coefficient d'utilisation de l'azote en 2013. Finalement, l'enfouissement des BP mixtes a émis davantage de GES que leur épandage agricole ($0,12 \pm 0,01$ t éq CO₂ t⁻¹ BP secs).

L'épandage agricole de BP serait potentiellement une bonne alternative à l'enfouissement pour atténuer les émissions de GES de la gestion des BP, dépendamment des émissions des processus de gestion en amont de leur épandage (transport) et des facteurs d'émissions indirectes considérés, tels les émissions évitées par substitution des engrais minéraux. Toutefois, une multiplication des mesures des émissions de GES serait nécessaire pour en augmenter leur précision et assurer des scénarios de comparaison robustes des émissions de GES évitées par un changement de gestion.

REMERCIEMENTS

Je remercie chaleureusement mes directeurs Claude Villeneuve et Patrick Faubert d'avoir cru en moi dans la réalisation de ce projet de maîtrise, ainsi que pour leur grande disponibilité, leur soutien et l'accompagnement qu'ils m'ont offert au cours des trois années nécessaires à sa réalisation.

Je remercie tous mes collègues à la Chaire en éco-conseil (UQAC) pour leurs collaborations dans la prise d'échantillons et de mesures au champ, pour le traitement des données en laboratoire, ainsi que toutes les réflexions que peut susciter un projet de maîtrise en recherche. Je tiens à remercier particulièrement Philippe Cournoyer-Farley, Pierre-Luc Dessureault, Boris Dufour, Pascal Dufour, Simon Durocher, Olivier Fradette, Frédéric Gagnon, Stéphanie Girard et Pascal Tremblay.

Je remercie également le soutien des professeurs et professionnels du Département des Sciences fondamentales (UQAC) pour leurs apports scientifiques et techniques, notamment Claire Fournier, Jean-Guy Girard, Maxime Paré, Caroline Potvin et Denis Walsh.

Je remercie la collaboration scientifique et technique de l'équipe de chercheurs d'Agriculture et Agroalimentaire Canada, je suis privilégiée d'avoir pu collaborer avec Normand Bertrand, Martin Chantigny, Annie Robichaud, Philippe Rochette et Noura Ziadi.

Je remercie l'équipe d'Agrinova pour leur soutien technique dans la réalisation des dispositifs, ainsi que pour mon initiation à l'univers agricole lors de mon stage dans leur organisation. Je souligne la collaboration de Xavier Desmeules, Gino Chayer, Nicolas St-Pierre et Richard Wieland.

Je remercie le Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques pour le financement de ce projet, ainsi que la Compagnie Produits Forestiers Résolu ayant fourni les BP pour cette étude et un accès privilégié à leur site d'enfouissement par l'entremise de Jean Gaudreault, Stéphane Boukatem et Daniel Desbiens.

Finalement, je remercie affectueusement mon conjoint Stéphane de m'avoir soutenue et accompagnée dans ce projet ambitieux de retour aux études avec deux petites cocottes à la maison. Je remercie également mes parents, mes sœurs et toute ma famille pour leurs encouragements et leurs soutiens satellites dans ce défi de conciliation étude-travail-famille.

TABLE DES MATIERES

RESUME	II
REMERCIEMENTS	IV
TABLE DES MATIERES	VI
LISTE DES FIGURES	VIII
LISTE DES TABLEAUX	VIII
LISTE DES ÉQUATIONS	XII
LISTE DES ACRONYMES	XIII
1. INTRODUCTION	1
1.1. La gestion des biosolides papetiers au Québec	1
1.2. Les biosolides papetiers : types et caractéristiques	2
1.3. Les émissions de la gestion par enfouissement	3
1.4. Les émissions de la gestion par épandage agricole	6
1.5. Objectifs de l'étude et hypothèses	10
2. MATERIEL ET METHODES	12
2.1. Site d'étude	12
2.2. Dispositif expérimental d'enfouissement pilote	13
2.3. Dispositif expérimental d'épandage agricole	16
2.4. Méthodes d'échantillonnage des gaz	20
2.5. Méthodes d'échantillonnage et d'analyse des BP et des conditions environnementales du dispositif d'enfouissement	23
2.6. Méthodes d'échantillonnage et d'analyse des sols, du blé et des conditions environnementales du dispositif d'épandage	25
2.7. Analyses statistiques	29

3. RESULTATS	31
3.1. Résultats du dispositif d'enfouissement pilote des BP	31
3.1.1. Variations saisonnières des émissions et facteurs de contrôle	31
3.1.2. Bilan des émissions de GES de la gestion de biosolides papetiers par enfouissement	40
3.2. Résultats du dispositif d'épandage agricole	42
3.2.1. Variations saisonnières des émissions	42
3.2.2. Facteurs contrôlant les émissions	45
3.2.3. Coefficients d'émissions agronomiques saisonniers, effets des traitements et rendements de la culture	49
4. DISCUSSION	58
4.1. Émissions de l'enfouissement à l'échelle pilote de biosolides papetiers	59
4.1.1. Variations saisonnières et facteurs influents	59
4.1.2. Bilan des émissions de l'enfouissement	66
4.1.3. Résultats globaux du dispositif d'enfouissement pilote	73
4.2. Émissions saisonnières de l'épandage agricole de biosolides papetiers	75
4.2.1. Variations saisonnières	75
4.2.2. Facteurs contrôlant les émissions	78
4.2.3. Bilan des émissions saisonnières de la gestion de biosolides papetiers par épandage agricole	81
4.2.4. Résultats globaux du dispositif d'épandage agricole	89
4.3. Comparaison d'émissions saisonnières de la gestion des biosolides papetiers mixtes par enfouissement et par épandage	91
5. CONCLUSION	95
RÉFÉRENCES	97

LISTE DES FIGURES

FIGURE 1 Localisation des dispositifs expérimentaux de mesure des gaz à effet de serre pour l'épandage de biosolides papetiers et l'enfouissement à l'échelle pilote à la ferme du collège d'Alma, Alma, Qc, Canada 13

FIGURE 2 Dispositif d'enfouissement pilote de biosolides papetiers mixtes et de biosolides papetiers primaires répartis de manière aléatoire avec trois répétitions par type de biosolides, pour un total de six unités expérimentales, dont les gaz à effet de serre ont été mesurés au cours des saisons 2013 et 2014 sans couvert nival. Les unités expérimentales AEFK4 et AEFA5 contenaient chacune quatre sondes de température à des profondeurs différentes (-0,1, -0,5, -1,0 et -2,0 m). Quatre piézomètres allant jusqu'à 2,0 m de profondeur étaient installés entre les unités expérimentales..... 15

FIGURE 3 Schéma d'aménagement d'une fosse d'enfouissement pilote contenant un volume de 8 m^3 ($2 \times 2 \times 2 \text{ m}$) de biosolides papetiers, dont les parois verticales étaient recouvertes de toile de polymère imperméable au gaz et à l'eau et dont le fond était constitué d'une couche moyenne de 0,20 m de gravier tamisé à 0,019 m net (3/4 de pouce net). 15

FIGURE 4 Deux dispositifs d'épandage agricole adjacents comptant chacun 18 unités expérimentales et testant six traitements de fertilisation répétés trois fois en blocs complets et aléatoires, dont les gaz à effet de serre ont été suivis lors d'une saison sans couvert nival. Les traitements de fertilisation consistaient en la substitution de l'apport en azote fourni par un engrais minéral par l'apport en azote fourni par des biosolides papetiers mixtes dans les proportions suivantes : témoin, 0%, 25%, 50%, 75%, 100%. 18

FIGURE 5 Évolutions saisonnières des émissions de surface et des conditions environnementales pour (a) la pluviométrie ($n=1$), (b) le N_2O , (moyennes; $n=3$) (c) la température de surface des biosolides papetiers (BP; moyennes; $n=3$), (d) le CH_4 , (moyennes; $n=3$) (e) le CO_2 , (moyennes; $n=3$) (f) les concentrations d'azote minéral (NO_3^- -N, NH_4^+ -N, totales (NO_3^- -N + NH_4^+ -N) (moyennes; $n=3$), (g) le pH, (moyennes; $n=3$) (h) le contenu volumétrique en eau (CVE) des BP (moyennes; $n=3$) et (i) le niveau de la nappe phréatique (moyennes; $n=4$) pour des fosses d'enfouissement pilotes lors des saisons de suivi 2013 et 2014 sans couvert nival pour les BP mixtes et les BP primaires. 32

FIGURE 6 Moyennes des caractéristiques des biosolides papetiers (BP) dans les fosses d'enfouissement pilotes en fonction des facteurs significatifs, soit (a) l'évolution du pH en fonction du facteur croisé type de BP \times profondeur ($n=6$; \pm erreur standard), (b) l'évolution du pH en fonction du facteur croisé type de BP \times année ($n=6$; \pm erreur standard), (c) l'évolution de l'azote total en fonction du facteur croisé type de BP \times profondeur \times année ($n=3$; \pm erreur standard), (d) l'évolution du carbone total en fonction du type de BP ($n=12$; \pm erreur standard), (e) l'évolution du carbone total en fonction de la profondeur ($n=12$; \pm erreur standard), (f) l'évolution du ratio C:N en fonction de l'année ($n=12$; \pm erreur standard) et (g) l'évolution du ratio C:N en fonction du facteur croisé type de BP \times profondeur ($n=6$; \pm erreur standard).37

FIGURE 7 Températures mesurées à quatre profondeurs (0,1, 0,5, 1,0 et 2 m) dans les biosolides papetiers (BP) pour (a) la fosse d'enfouissement pilote de BP mixtes (AEFK4; $n=1$) et la fosse d'enfouissement pilote de BP primaires (AEFA5; $n=1$) et pour (b) la fosse d'enfouissement pilote contenant des BP mixtes (AEFK4; $n=1$) et le site d'enfouissement industriel de papetière ($n=1$).39

FIGURE 8 Évolution saisonnière des émissions de surface et des conditions environnementales du sol suite à la fertilisation agricole au cours des saisons 2013 et 2014, soit (a) la pluviométrie ($n=1$), (b) les émissions (moyenne; $n=3$) de N_2O , (c) de CH_4 et (d) de CO_2 , (e) la température du sol (moyenne; $n=18$), (f) des concentrations (moyenne; $n=3$) de NH_4^+-N , (g) des concentrations (moyenne; $n=3$) de NO_3^--N et (h) l'espace des pores emplis d'eau (EPEE; moyenne; $n=3$) calculé avec les contenus volumétriques en eau mesurés à l'humidimètre portatif à une profondeur de 0,20 m (2013) et à 0,12 m (2014). Les traitements de fertilisation 0% BP, 25% BP, 50% BP, 75% BP, 100% BP équivalent au pourcentage des apports en azote disponible pour la culture par les biosolides papetiers (BP), la balance étant fournie par l'engrais minéral.43

FIGURE 9 Émissions journalières de N_2O en fonction de la concentration en NO_3^- dans les sols en surface (0,0 – 0,2 m) et de l'espace des pores emplis d'eau (EPEE) en surface (0,0 – 0,20 m) calculé avec le contenu gravimétrique en eau des échantillons de sol après l'application de traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers, combiné ou non avec un engrais minéral, pour (a) la saison 2013 et (b) 2014.47

FIGURE 10 Relations significative (valeur de significativité de $\alpha=0,10$) entre (a) les émissions cumulées de N_2O et l'espace des pores emplis d'eau (EPEE) moyens mesurés avec le contenu gravimétrique des échantillons de sol mesurés en laboratoire, (b) les émissions cumulées de N_2O et les émissions cumulées de CO_2 , (c) les émissions cumulées de N_2O et l'exposition aux nitrates, (d) ainsi qu'entre les émissions au rendement et le coefficient d'utilisation de l'azote (CUA), après l'application de traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers, combiné ou non avec un engrais minéral, pour la saison 2013 et 2014.48

LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1 Description générale des papetières ayant fourni des biosolides papetiers pour le dispositif expérimental d'enfouissement pilote (MDDELCC 2015)	14
TABLEAU 2 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des caractéristiques physico-chimiques des types de biosolides papetiers enfouis entre 0,75 et 1,25 m de profondeur à l'échelle pilote 16	
TABLEAU 3 Caractéristiques physico-chimiques des biosolides papetiers utilisés en fertilisation agricole lors des saisons 2013 et 2014	19
TABLEAU 4 Caractéristiques des six traitements de fertilisation agricole avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014.....	20
TABLEAU 5 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des émissions cumulées de surface et relative (%) pour le N ₂ O, CH ₄ et CO ₂ par types de biosolides papetiers (BP) enfouis à l'échelle pilote pour les saisons 2013 et 2014 sans couvert nival individuellement et pour la période de suivi complète 2013-2014. Les valeurs de P des ANOVA avec type en facteur fixe sont présentées.....	34
TABLEAU 6 Valeurs de P et degré de liberté au numérateur et dénominateur (Ddl num, Ddl demun) des ANOVA en mesures répétées à un facteur inter-sujet (types; facteur fixe) et un facteur intra-sujet (jour; facteur fixe) sur les concentrations de nitrates (NO ₃ ⁻) et d'ammonium (NH ₄ ⁺), le pH, le contenu volumétrique en eau (CVE), ainsi que la température (T) des biosolides papetiers en surface dans les fosses d'enfouissement pilotes; le test de Huynh-Feldt (H-F) a été utilisé pour déterminer la valeur de P des facteurs intra-sujets; le taux de significativité est de $\alpha=0,05$ et les valeurs de P des facteurs significatifs retenus pour les analyses sont en gras.	35
TABLEAU 7 Valeur de P des ANOVA factorielles complètes à trois facteurs fixes de deux niveaux chacun, soit types de biosolides papetiers (BP; BP mixtes et BP primaires), profondeur (0,00 – 0,20 et 0,75 – 1,25 m) et année (2013 et 2014) et où le facteur type de BP est imbriqué dans le facteur aléatoire parcelle pour les différentes caractéristiques des BP dans les fosses d'enfouissement pilotes; le taux de significativité est de $\alpha=0,10$ et les valeurs de P des facteurs significatifs retenus pour les analyses sont en gras.	36
TABLEAU 8 Températures journalières minimales, maximales et moyennes enregistrées du 1er juin au 1er octobre 2013 et du 1er juin au 1er octobre 2014 à quatre profondeurs (0,1 m, 0,5 m, 1,0 m, 2,0 m) pour les biosolides papetiers (BP) mixtes de la fosse d'enfouissement pilote AEFK4 (n=1) et pour les BP primaires de la fosse d'enfouissement pilote AEFA5 (n=1).....	40

TABLEAU 9 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des émissions cumulées de la gestion par enfouissement à l'échelle pilote des biosolides papetiers (BP) mixtes et des BP primaires suivies sur deux ans considérant différentes profondeurs pour établir la masse de référence des émissions de surface, soit (a) 2 m de profondeur, (b) 1 m et (c) 0,5 m.41

TABLEAU 10 Matière organique du sol des unités expérimentales du dispositif d'épandage agricole de la saison 2014 avant et après l'application des traitements de fertilisation organique et minérale (moyenne \pm erreur standard; n=3).46

TABLEAU 11 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des émissions cumulées de N₂O de surface, du facteur d'émissions de N₂O induites par le fertilisant et des émissions cumulées au rendement après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons.50

TABLEAU 12 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des émissions cumulées de CO₂ de surface pour les six premières semaines, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral.53

TABLEAU 13 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des prélèvements en azote pour la partie aérienne du blé et des rendements de grain après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons.55

TABLEAU 14 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des exposition aux nitrates, coefficient d'utilisation de l'azote (CUA) et excédents en azote dans le sol après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons.57

TABLEAU 15 Émissions de méthane (CH₄) générées et émissions de méthane nettes calculées avec le modèle du NCASI (2005) utilisant une version simplifiée de la méthode de décomposition de premier ordre du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (IPCC 2006) avec des coefficients de constante de vitesse de dégradation (k) et de potentiel de production de méthane (L₀) proposés par différentes études pour l'enfouissement de matières résiduelles de papetières sur une période de 2 ans et de 50 ans.68

TABLEAU 16 Synthèse d'études sélectionnées sur les émissions de l'épandage agricole de matières organiques en climat froid et humide.85

LISTE DES ÉQUATIONS

ÉQUATION 1 Dose de biosolides papetiers à épandre.....	19
ÉQUATION 2 Émissions de gaz à effets de serre.....	21
ÉQUATION 3 Facteur d'émissions induites par le fertilisant	22
ÉQUATION 4 Espace des pores emplis d'eau à la surface des biosolides papetiers calculé avec le contenu volumétrique en eau.....	25
ÉQUATION 5 Coefficient d'utilisation de l'azote	27
ÉQUATION 6 Excédents en azote dans le sol	27
ÉQUATION 7 Espace des pores emplis d'eau calculé avec le contenu volumétrique en eau du sol.....	28
ÉQUATION 8 Espace des pores emplis d'eau calculé avec le contenu gravimétrique en eau du sol.....	28
ÉQUATION 9 Méthane généré selon la méthode simplifiée de décomposition de premier ordre du NCASI (2005)	67

LISTE DES ACRONYMES

AABP	Apport d'azote par les biosolides papetiers
AAC	Agriculture et Agroalimentaire Canada
AAS	Apport en azote par le sol
ANOVA	Analyse de la variance
ANOVAR	Analyse de la variance en mesures répétées
BP	Biosolides papetiers
BAC	Besoin en azote de la culture
CABP	Contenu en azote dans les biosolides papetiers
CEBP	Coefficient d'efficacité des biosolides papetiers
CEAEQ	Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec
CH ₄	Méthane
CO ₂	Dioxyde de carbone
C:N	Ratio de carbone par rapport à l'azote
CRAAQ	Centre de référence en agriculture et agroalimentaire du Québec
CUA	Coefficient d'utilisation de l'azote
CVE	Contenu volumétrique en eau
CVES	Contenu volumétrique en eau du sol
DA	Dose d'azote totale
DBP	Dose de biosolides papetiers
DP	Densité des particules
DPO	Décomposition de premier ordre
DS	Densité du sol
ECf	Émissions cumulées de la parcelle fertilisée
ECt	Émissions cumulées de la parcelle témoin
EPA	<i>Environmental Protection Agency</i>
EPEE	Espace des pores remplis d'eau
éq CO ₂	Équivalent dioxyde de carbone
FEIF	Facteur d'émissions induit par le fertilisant
FPEBP	Facteur de perte d'efficacité des biosolides papetiers

GES	Gaz à effet de serre
GIEC	Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat
H-F	Test statistique de Huynh-Feldt
IPCC	<i>Intergovernmental Panel on climate Change</i>
KCl	Chlorure de potassium
MDDEFP	Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs
MDDELCC	Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques
MDDEP	Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs
MEEB	Modèle d'évaluation des émissions associées aux biosolides municipaux
N	Azote
NCASI	<i>National Council for air and Stream Improvement</i>
NH ₂ OH	Hydroxylamine
NH ₄ ⁺	Ammonium
NO	Oxyde nitrique
NO ₂ ⁻	Nitrite
NO ₃ ⁻	Nitrate
N ₂ O	Protoxyde d'azote
NPK	Azote, phosphore et potassium
PA	Prélèvement en azote de la partie aérienne de la culture
PAf	Prélèvement en azote de la partie aérienne de la culture dans la parcelle fertilisée
PA _t témoin	Prélèvement en azote de la partie aérienne de la culture dans la parcelle témoin
PFR	Produits forestiers Résolu
PRG	Potentiel de réchauffement global
Qc	Québec
UQAC	Université du Québec à Chicoutimi

1. Introduction

1.1. La gestion des biosolides papetiers au Québec

Les biosolides papetiers (BP) sont des matières résiduelles organiques générées lors du traitement des eaux de procédés de l'industrie des pâtes et papiers. En 2012, l'industrie papetière québécoise a généré près de 1,4 million de tonnes de résidus de pâtes et papiers sous forme de BP (MDDELCC 2015), soit près du quart des matières organiques générées dans la province (RECYC-QUÉBEC. 2014). Cette production annuelle de matières résiduelles a été gérée à 29% par enfouissement, à 31% par épandage agricole, à 35% par combustion et à 5% par d'autres filières, dont le compostage (MDDELCC 2015). Ce portrait de gestion des BP est sujet à changer avec la mise en application de la *Politique québécoise de gestion des matières résiduelles* visant l'interdiction de l'enfouissement de la matière organique d'ici 2020 (MDDEP 2011).

Les différents modes de gestion des BP ont des impacts économiques, environnementaux et sociaux spécifiques qui méritent d'être évalués dans le cadre d'un changement de pratique afin d'identifier les alternatives les plus avantageuses dans les différents contextes. Cela peut permettre de mettre en place des moyens d'atténuation des impacts adaptés, lorsque nécessaire (Primeau 2014). Parmi ces impacts, les émissions de gaz à effet de serre (GES) résultant de la disposition des BP sont préoccupantes dans un contexte de changements climatiques. Toutefois, les émissions de GES des différents modes de gestion des BP sont peu documentées dans la littérature scientifique (Faubert *et al.* 2016), ce qui rend difficile l'évaluation de l'impact des changements de pratiques sur le bilan de GES de l'industrie papetière. Or, les fabriques de pâtes et papiers figurent parmi les grands émetteurs finaux de GES visés par le marché Western Climate Initiative, auquel le Québec a souscrit en 2012, et le gouvernement du Québec s'est fixé l'objectif de réduction de 20% des émissions de gaz à effet de serre (GES) par rapport au niveau de 1990, d'ici 2020 (Gouvernement du Québec 2012). Ainsi, les émissions des modes actuels de gestion des BP gagneraient à être mieux documentées.

1.2. Les biosolides papetiers : types et caractéristiques

L'industrie papetière québécoise utilise de grandes quantités d'eau dans ses processus de production de pâtes et papiers et de nettoyage. Les eaux de procédés nécessitent ensuite des traitements primaires et généralement aussi des traitements secondaires afin de répondre aux normes environnementales de rejets à l'effluent régies par le *Règlement sur les fabriques de pâtes et papiers* (chapitre Q-2, r.27) (CANMET 2005). Les caractéristiques des BP sont tributaires de la composition initiale des eaux de procédés et de leur épuration, qui dans une certaine mesure sont spécifiques à chaque papetière dépendamment du type de fibres de bois utilisées dans leurs recettes, des procédés de fabrication et des traitements des eaux usées (CANMET 2005; Meyer et Edwards 2014; Faubert *et al.* 2016).

Les procédés de production de pâtes et papiers se regroupent en cinq grands types (CANMET 2005; MDDEFP 2012; Faubert *et al.* 2016) :

1. Procédés mécaniques (c.-à-d. procédés de broyage des copeaux et de raffinage);
2. Procédés thermomécaniques (c.-à-d. procédés de broyage des copeaux et de raffinage, avec traitement à la vapeur avant et pendant le raffinage et raffinage sous pression);
3. Procédés chimico-thermomécanique (c.-à-d. procédés thermomécaniques avec ajout initial de produits chimiques aux copeaux);
4. Procédés chimiques (c.-à-d. procédés de cuisson à haute pression d'un mélange de copeaux et de réactifs chimiques appelés « liqueur de cuisson », les principaux réactifs utilisés étant le sulfate (pour le procédé Kraft), le sulfite et le bisulfite);
5. Procédés fabrication de papier (c.-à-d. procédés de blanchiment, de séchage, de mise en feuille et finition; les principaux agents de blanchiment utilisés étant l'oxygène, l'hypochlorite de sodium, le dioxyde de chlore et le peroxyde d'hydrogène).

Trois principaux types de BP sont issus des traitements des eaux de procédés : les BP primaires, les BP secondaires et les BP de désencrage (CANMET 2005; Mahmood et

Elliott 2006; Faubert *et al.* 2016). Les BP primaires et secondaires sont régulièrement combinés dans les procédés de gestion des matières résiduelles pour former des BP mixtes (CANMET 2005; Mahmood et Elliott 2006; Faubert *et al.* 2016). Dans les papetières canadiennes, le ratio moyen de BP primaires:secondaires des BP mixtes est estimé à 70:30 (Mahmood et Elliott 2006), mais varie entre les usines (c.-à-d. 50:50, 40:60 ou 67 :33) (Faubert *et al.* 2016). Les BP primaires proviennent du traitement primaire des eaux de procédés consistant généralement en des processus physicochimiques de flottation et de sédimentation (CANMET 2005). Les biosolides générés sont riches en matières fibreuses et organiques, typiquement composés à 50% de fibres de cellulose, 30% de lignine et 20% d'hydrocarbures aromatiques et d'hémicellulose (CANMET 2005) et ont un ratio C:N élevé (CANMET 2005; Faubert *et al.* 2016). Les BP secondaires sont issus de traitements biologiques, généralement aérobies et parfois anaérobies (Ashrafi *et al.* 2013; Meyer et Edwards 2014), où les microorganismes sont utilisés pour diminuer la charge de matière organique en suspension, ainsi que les demandes chimiques et biologiques en oxygène (CANMET 2005; Mahmood et Elliott 2006). Un enrichissement en azote et en phosphore des eaux secondaires est nécessaire pour maintenir les activités des microorganismes (CANMET 2005). Les biosolides générés sont principalement composés de biomasse microbienne ayant un faible ratio C:N (CANMET 2005; Faubert *et al.* 2016). Les BP de désencrage ne sont pas considérés dans la présente étude.

1.3. Les émissions de la gestion par enfouissement

La disposition des déchets et biosolides par enfouissement, par traitement des eaux usées et par incinération est responsable de 3,0% des émissions anthropogéniques de GES, principalement sous forme de méthane (CH₄) (IPCC 2014), un GES à potentiel de réchauffement global de 28 par rapport au dioxyde de carbone (CO₂) (IPCC 2013). Au Canada, l'enfouissement est une source significative d'émissions de CH₄ (Environnement Canada 2015). Les sites d'enfouissement sont aussi des émetteurs de protoxyde d'azote (N₂O) (Börjesson et Svensson 1997a; Rinne *et al.* 2005; Zhang *et al.* 2009), un gaz à potentiel de réchauffement global 265 fois supérieur au CO₂ (IPCC 2013), mais sont

généralement considérés comme une source négligeable dans les inventaires nationaux de GES (Börjesson et Svensson 1997a; Rinne *et al.* 2005; IPCC 2006; IPCC 2014). Les émissions des CH₄ et de N₂O de l'enfouissement municipal font l'objet d'un important effort d'inventaire depuis plus de 15 ans (Bogner *et al.* 1999; Mosher *et al.* 1999; Spokas *et al.* 2003; Rinne *et al.* 2005; Themelis et Ulloa 2007; Zhang *et al.* 2009; Ishii et Furuichi 2013). Les émissions de GES spécifiques à l'enfouissement de BP ont été estimées par quelques coefficients d'émissions (NCASI 2005; Heath *et al.* 2010; SwedishEPA 2015) calculés en utilisant des modèles de décomposition de premier ordre (DPO; en anglais *First order decay*) (IPCC 2006; Faubert *et al.* 2016). Toutefois, au meilleur de nos connaissances, aucune étude n'a comptabilisé les émissions de GES de l'enfouissement pratiquement exclusif de BP, par une méthode de mesure directe (Faubert *et al.* 2016). Ainsi, les facteurs d'émissions calculés pour l'enfouissement des BP par des méthodes de DPO n'ont pas été validés par des études sur le terrain.

Les émissions nettes de CH₄ de l'enfouissement résultent d'activités microbiennes antagonistes, mais corrélées entre elles, soit la méthanogénèse et la méthanotrophie (Czepiel *et al.* 1996; Bogner *et al.* 1999). La méthanogénèse est un processus biologique nécessitant des conditions anaérobies strictes, dont les principaux produits sont le CH₄, et le CO₂ (Le Mer et Roger 2001). Ce processus peut être impliqué lors de la décomposition de la matière organique en conditions anaérobies, qui dans ce cas implique quatre principales étapes successives (Le Mer et Roger 2001; Thangarajan *et al.* 2013) :

1. L'hydrolyse : des polymères biotiques sont convertis en monomères tels les acides aminés et les acides gras;
2. L'acidogénèse : les monomères sont convertis en composés tels des acides gras volatils, des alcools, de l'hydrogène et du CO₂;
3. L'acétogénèse : les acides gras volatils sont convertis en acétates, en CO₂ et en hydrogène;
4. La méthanogénèse : les acétates et l'hydrogène sont convertis en CH₄ et CO₂.

Le CH_4 généré en conditions anaérobies peut être oxydé en CO_2 par un processus biotique nécessitant des conditions aérobies, la méthanotrophie (Le Mer et Roger 2001). D'ailleurs, les bactéries méthanotrophes à la surface des sites d'enfouissement ont un grand pouvoir de régulation des émissions nettes de CH_4 (Boeckx *et al.* 1996; Czepiel *et al.* 1996; Börjesson et Svensson 1997b; Börjesson *et al.* 2004).

Les émissions de N_2O en sites d'enfouissement municipaux sont principalement associées aux processus de nitrification méthanotrophe (Mandernack *et al.* 2000; Rinne *et al.* 2005; Zhang *et al.* 2009). Les bactéries méthanotrophes peuvent co-oxyder l'ammonium (NH_4^+) (Dalton 1977 *cité dans* Mandernack *et al.* 2000), étant donné les similitudes entre la taille et la structure du NH_4^+ et du CH_4 , ainsi que la similitude des enzymes d'oxydation des organismes nitrifiants autotrophes et des méthanotrophes (Cantera et Stein 2007; Stein et Klotz 2011). Ce processus de co-oxydation du NH_4^+ est aussi connu sous le nom de nitrification méthanotrophe (Mandernack *et al.* 2000), un processus générant de l'hydroxylamine (NH_2OH), puis des nitrites (NO_2^-) ou du monoxyde d'azote (NO) comme produits intermédiaires et dont le produit final est le N_2O (Stein et Klotz 2011). Les émissions de N_2O de l'enfouissement de la matière organique pourraient aussi provenir d'un processus de dénitrification des nitrates (NO_3^-) (Bogner *et al.* 1999; Rinne *et al.* 2005).

Plusieurs facteurs influencent la décomposition de la matière organique enfouie et les émissions de GES qui en résultent. Le contenu en eau est l'un des principaux facteurs contrôlant la décomposition de la matière organique dans les sites d'enfouissement et est généralement insuffisant (Kelly *et al.* 2006; Bäumlér et Kögel-Knabner 2008). Un contenu en eau avoisinant 50-60% g g^{-1} est considéré comme optimal pour la décomposition anaérobie de la matière organique et la production de CH_4 (Kelly *et al.* 2006; Emkes *et al.* 2015). La quantité de carbone organique dégradable est un autre facteur clé de la production de CH_4 (IPCC 2006) et celui-ci est largement associé à la quantité de cellulose et d'hémicellulose contenue dans la matière organique (Kelly *et al.* 2006; Bayr et Rintala 2012). Des conditions de pH neutre ou légèrement alcalin sont généralement optimales pour les activités méthanogènes (Garcia *et al.* 2000) et une chute de pH dans les sites d'enfouissement induit une chute de production de CH_4 (Emkes *et al.* 2015).

L'augmentation des températures stimule les activités des bactéries méthanogènes et méthanotrophes. L'optimum de température pour l'activité des bactéries méthanogènes se situe entre 30 à 40°C (Le Mer et Roger 2001; Emkes *et al.* 2015). Or, les températures annuelles moyennes observées dans des cellules d'enfouissement de plusieurs sites varient entre 15 à 50°C (Koerner et Koerner 2006; Bäumlér et Kögel-Knabner 2008). Les températures optimales pour les activités oxydatives des méthanotrophes varient en fonction de leur type; celles de types I ayant une augmentation de leurs activités entre 5 et 10°C, celles de types II ayant des activités oxydatives élevées seulement à 20°C et plus (Börjesson *et al.* 2004). Il faut aussi rappeler que la présence d'agents toxiques ou d'inhibiteurs, tels les métaux lourds, les solvants, les grandes concentrations d'hydrogène ou de peroxyde d'hydrogène, les composés sulfurés et les composés chlorés, limite la méthanogénèse (Meyer et Edwards 2014; Emkes *et al.* 2015).

Les méthodes de mesure des émissions de la décomposition de la matière organique par enfouissement sont sujettes à différentes sources d'incertitude. D'une part, les estimations des émissions par calculs en utilisant des modèles de DPO comportent des incertitudes associées à leur modèle mathématique relativement simple en comparaison à la complexité des processus de décomposition, ainsi que des incertitudes associées aux données utilisées (IPCC 2006). Les modèles de DPO tendent typiquement à surestimer les GES produits par l'enfouissement (Cossu *et al.* 1996 cité dans Ishii et Furuichi 2013). D'autre part, les émissions de GES obtenues par l'approche par mesures directes sont aussi limitées puisque spécifiques aux conditions de site (pouvant être très variables) et généralement réalisées pour une courte période de temps (Spokas *et al.* 2003).

1.4. Les émissions de la gestion par épandage agricole

L'agriculture est responsable d'environ 10-12% des émissions anthropogéniques de GES à l'échelle mondiale en 2010 (IPCC 2014). Au Canada, l'agriculture produit 70% des émissions anthropogéniques de N₂O (Environnement Canada 2015) et la fertilisation azotée minérale ou organique contribue à une partie de ces émissions (Helgason *et al.* 2005;

Rochette *et al.* 2008c; Thangarajan *et al.* 2013). Aussi, les émissions et la suppression de CH_4 attendues pour un sol agricole non-submergé (c.-à-d. excluant les rizières et territoires immergés) et aménagé intensivement sont négligeables (Le Mer et Roger 2001; Ball *et al.* 2004). Les bienfaits agronomiques de l'épandage de BP sont largement documentés, notamment l'amélioration de la fertilité des sols, des contenus en nutriments, du pH, de la taille et quantité d'agrégats, de la capacité de rétention d'eau; cela améliorant les rendements des cultures (Camberato *et al.* 2006; Hébert *et al.* 2010; Gagnon et Ziadi 2012). Toutefois, peu d'études ont comptabilisé les émissions de N_2O de l'épandage de BP (Baggs *et al.* 2000; Chantigny *et al.* 2013; Faubert *et al.* 2015; Faubert *et al.* 2016). Baggs *et al.* (2002) ont observé une hausse des émissions N_2O lors des trois semaines suivant l'application de BP mixtes et Chantigny *et al.* (2013) ont observé que l'application de BP sur un sol à texture fine pour une culture de maïs émettait moins de N_2O que l'application de lisier de porc et de fertilisants minéraux azotés.

Les émissions de N_2O de la fertilisation agricole sont principalement tributaires des processus biologiques de nitrification autotrophe et de dénitrification (Bateman et Baggs 2005). La nitrification autotrophe est un processus aérobie d'oxydation progressive du NH_4^+ en NO_2^- , puis en NO_3^- (Bolan *et al.* 2004) et pouvant générer du N_2O en sous-produit par l'oxydation du NH_2OH (Stein 2011) ou par la nitrification-dénitrifiante des NO_2^- lors de courtes périodes de limitation en oxygène (Wrage *et al.* 2001). La dénitrification est produite par des microorganismes hétérotrophes utilisant le NO_3^- comme donneur d'électrons plutôt que l'oxygène lorsqu'en conditions anoxiques pour obtenir de l'énergie et du carbone de la matière organique (Knowles 1982; Thangarajan *et al.* 2013). La dénitrification incomplète du NO_3^- par les microorganismes dénitrifiants émet un mélange de diverses molécules gazeuses d'azote, dont du NO , du N_2O et du diazote (N_2) (Knowles 1982; Thangarajan *et al.* 2013). La dénitrification génère 5 à 10 fois plus de N_2O que la nitrification autotrophe (Bateman et Baggs 2005) et est considérée comme la principale source d'émissions de N_2O en sol agricole (Bateman et Baggs 2005; Baggs 2008).

Plusieurs conditions environnementales du sol et de disponibilité des substrats influencent les émissions des processus de nitrification et de dénitrification (Rochette *et al.* 2008c;

Thangarajan *et al.* 2013). La disponibilité de l'oxygène dans les sols, l'un des principaux facteurs contrôlant les émissions de N_2O , est déterminée par le contenu en eau et le taux de consommation de l'oxygène (respiration) dans les sols (Tiedje 1988). Le statut en oxygène des sols étant difficile à mesurer sur le terrain, l'une des principales données indirectes utilisées pour évaluer sa disponibilité est l'espace des pores remplis d'eau (EPEE; en anglais *water-filled pore space*) (Thangarajan *et al.* 2013). Les émissions de N_2O sont principalement associées à la nitrification lorsque l'EPEE est inférieur à $60\% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ et à la dénitrification lorsque l'EPEE est supérieur à $70\% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ (Bateman et Baggs 2005). La disponibilité du substrat minéral sous forme de NH_4^+ ou de NO_3^- est nécessaire aux émissions de N_2O par nitrification (Bolan *et al.* 2004) ou par dénitrification (Knowles 1982), respectivement. Or, la fertilisation azotée tend à faire augmenter leurs concentrations dans les sols ce qui explique que les émissions de N_2O tendent à augmenter après fertilisation (Rochette *et al.* 2008c; Thangarajan *et al.* 2013). L'exposition aux nitrates est une mesure intégrée de la disponibilité du substrat (Burton *et al.* 2008) et est reconnue comme un facteur contrôlant les émissions de N_2O par dénitrification (Burton *et al.* 2008; Zebarth *et al.* 2008; Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012; Chantigny *et al.* 2013). La disponibilité du carbone est aussi nécessaire au processus de dénitrification (Knowles 1982) et peut être estimée avec différentes données indirectes, dont l'exposition au carbone organique extractible à l'eau (Chantigny *et al.* 2010; Chantigny *et al.* 2013) et les émissions de CO_2 cumulées (Rochette *et al.* 2004; Petersen *et al.* 2008; Pelster *et al.* 2012).

Les lignes directrices du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC; en anglais *Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC*) (2006) pour l'inventaire des GES proposent un facteur d'émissions de N_2O induit par la fertilisation agricole (FEIF- N_2O ; en anglais *fertilizer-induced emission factors, FIEF- N_2O*) de 1%, soit le pourcentage de perte sous forme de N_2O de l'azote appliqué, peu importe le type de sol et de fertilisant. Toutefois, une étude nationale sur les émissions agricoles canadiennes propose un FEIF- N_2O régional spécifique pour les régions humides de l'Est du Canada, soit un FEIF- N_2O régional de 1,7%, et estime que les sols à texture fine y libèrent 50% plus d'émissions que ceux à granulométrie grossière ou moyenne (Rochette *et al.* 2008c).

L'utilisation de BP comme fertilisant organique agricole permet aussi un remplacement de l'usage d'engrais minéraux, partiel ou complet dépendant des choix agronomiques. La tendance entre les émissions de N_2O de surface des fertilisants organiques, comme les lisiers, les fumiers et les BP, comparativement à celles des engrais minéraux n'est pas clairement prévisible compte tenu des résultats contradictoires relatés dans la littérature; les émissions de N_2O de surface des fertilisants organiques étant parfois supérieures à celles des engrais minéraux (Velthof *et al.* 2003; van Groenigen *et al.* 2004; Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012), parfois semblables (Rochette *et al.* 2008b; Pelster *et al.* 2012) et parfois inférieures (Velthof *et al.* 1996; Chantigny *et al.* 2010; Chantigny *et al.* 2013). D'une part, il semblerait que les fertilisants organiques émettent davantage de N_2O de surface que les engrais minéraux en sol à texture grossière pauvre en matière organique (Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012), à cause d'une limitation en carbone pour la dénitrification (Petersen *et al.* 2008). D'autre part, les émissions de N_2O de surface des fertilisants organiques seraient semblables ou inférieures à celles provenant de fertilisants minéraux dans les sols à texture fine riche en matière organique (Rochette *et al.* 2008b; Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012), puisque la dénitrification y est généralement limitée en NO_3^- (Chantigny *et al.* 2013).

La méta-analyse de van Groenigen *et al.* (2010) propose l'utilisation des émissions de N_2O au rendement de culture comme un mode additionnel de comparaison des émissions de GES des pratiques agricoles. Ce coefficient permet de lier les émissions de N_2O de surface, principalement associées aux conditions environnementales du sol, à l'efficacité agronomique de l'utilisation de l'azote (van Groenigen *et al.* 2010). Les émissions de N_2O au rendement peuvent être expliquées par le coefficient d'utilisation de l'azote (CUA) et par les excès d'azote dans les sols (van Groenigen *et al.* 2010); deux paramètres pouvant être reliés aux recommandations de fertilisation agronomique (Tremblay *et al.* 2010).

1.5. Objectifs de l'étude et hypothèses

L'objectif principal de cette étude est de quantifier les émissions de GES provenant de la gestion des BP par enfouissement et par épandage agricole, soit deux des principaux modes de disposition des BP au Québec (MDDELCC 2015). Les émissions de la disposition des BP sont très peu documentées et gagneraient à être mieux estimées dans le contexte de changement de pratiques de gestion qui pourrait survenir suivant l'interdiction de l'enfouissement des matières organiques pour 2020, au Québec. Présentement, le bilan de GES de l'industrie des pâtes et papiers peut être estimé à l'aide du calculateur élaboré par le *National Council for air and Stream Improvement* (NCASI 2005), toutefois les émissions de GES spécifiques aux modes de disposition des BP ne sont pas connues. De nouveaux facteurs d'émissions de GES documentés scientifiquement pour la décomposition des BP par enfouissement et par épandage agricole pourraient servir à compléter le calculateur du NCASI (2005), être intégrés à des bases de données comme celle de Ecoinvent (Ecoinvent 2013) ou encore servir à élaborer un nouveau modèle similaire au modèle d'évaluation des émissions associées aux biosolides municipaux (MEEB, en anglais *BEAM*) (SYLVIS 2009; Brown *et al.* 2010; Faubert *et al.* 2015). Ces nouveaux facteurs d'émissions de GES des modes de disposition des BP permettraient de produire des analyses de cycle de vie comparatives des émissions de GES de la barrière au tombeau (*gate to grave*); soit des outils d'aide à la décision pour réaliser une planification responsable des BP dans le cadre d'une lutte aux changements climatiques. Obtenir des facteurs d'émissions mesurés est aussi une étape incontournable pour établir un scénario de référence et un scénario de projet afin d'obtenir des crédits compensatoires destinés au marché du carbone si l'une des alternatives présente des avantages en termes de réduction des émissions.

Le deuxième objectif de l'étude est de déterminer l'effet sur les émissions de GES de la substitution complète et graduelle de l'engrais minéral par les BP dans un contexte de pratiques agronomiques représentatives. Considérant le bilan de GES dans une approche de cycle de vie, la substitution de l'engrais minéral par l'épandage de BP modifie possiblement les émissions directes de GES et permet l'évitement des émissions indirectes associées à l'énergie utilisée pour la production des engrais minéraux (Brown *et al.* 2010).

L'absence de consensus clair de la tendance entre les émissions de GES des engrais minéraux comparativement aux matières organiques (tel que mentionné précédemment à la section 1.4) nécessite davantage d'investigation.

Le troisième objectif de l'étude est de mieux comprendre les facteurs influençant des émissions saisonnières de GES des filières de gestion par enfouissement et par épandage agricole. Les facteurs d'émissions de GES mesurés de l'enfouissement et de l'épandage des BP sont peu documentés dans la littérature scientifique (Faubert *et al.* 2016). Une meilleure compréhension de ces facteurs permettra de mieux situer les résultats contextuels de cette étude dans une réflexion plus générale et de mieux comparer les émissions mesurées avec celles d'autres matières organiques.

Dans le cadre de cette étude, trois principales hypothèses ont été posées. La première hypothèse est que deux types différents de BP et provenant d'usines différentes ne produiront pas la même quantité de GES suite à leur enfouissement, puisque les procédés de traitement des eaux usées et les caractéristiques des BP résiduels varient entre les papetières (CANMET 2005; Meyer et Edwards 2014; Faubert *et al.* 2016). La seconde hypothèse est que la substitution complète ou partielle de l'engrais minéral par les BP mixtes produit moins d'émissions saisonnières, corroborant les résultats obtenus antérieurement (Chantigny *et al.* 2013). La troisième hypothèse est que les émissions saisonnières de GES de l'épandage agricole de BP mixtes seront moins élevées que celles de l'enfouissement, tel que conclue pour la gestion des biosolides municipaux (Brown *et al.* 2010; Liu *et al.* 2013).

2. Matériel et méthodes

2.1. Site d'étude

L'étude a été réalisée lors des saisons estivales 2013 et 2014 à la ferme expérimentale du collège d'Alma, à Alma dans la région du Saguenay-Lac-Saint-Jean, province de Québec, Canada (48°30'N, 71°35'O). La température annuelle moyenne y était de 1,9°C et les précipitations annuelles moyennes y étaient de 1048 mm, dont 262 mm reçus sous forme de neige. Le sol était un loam Taillon de classe 2 selon l'inventaire des Terres du Canada (Raymond *et al.* 1965).

Le champ d'expérimentation de 0,4 hectare a été divisé en trois sections adjacentes (Figure 1). La partie la plus méridionale a servi à l'aménagement d'un dispositif d'enfouissement pilote *ex-situ* suivi sur deux saisons sans couvert nival, avec l'objectif d'y reproduire des conditions de sites d'enfouissement de papetières. Les deux autres sections ont été destinées aux dispositifs *in-situ* d'épandage agricole.

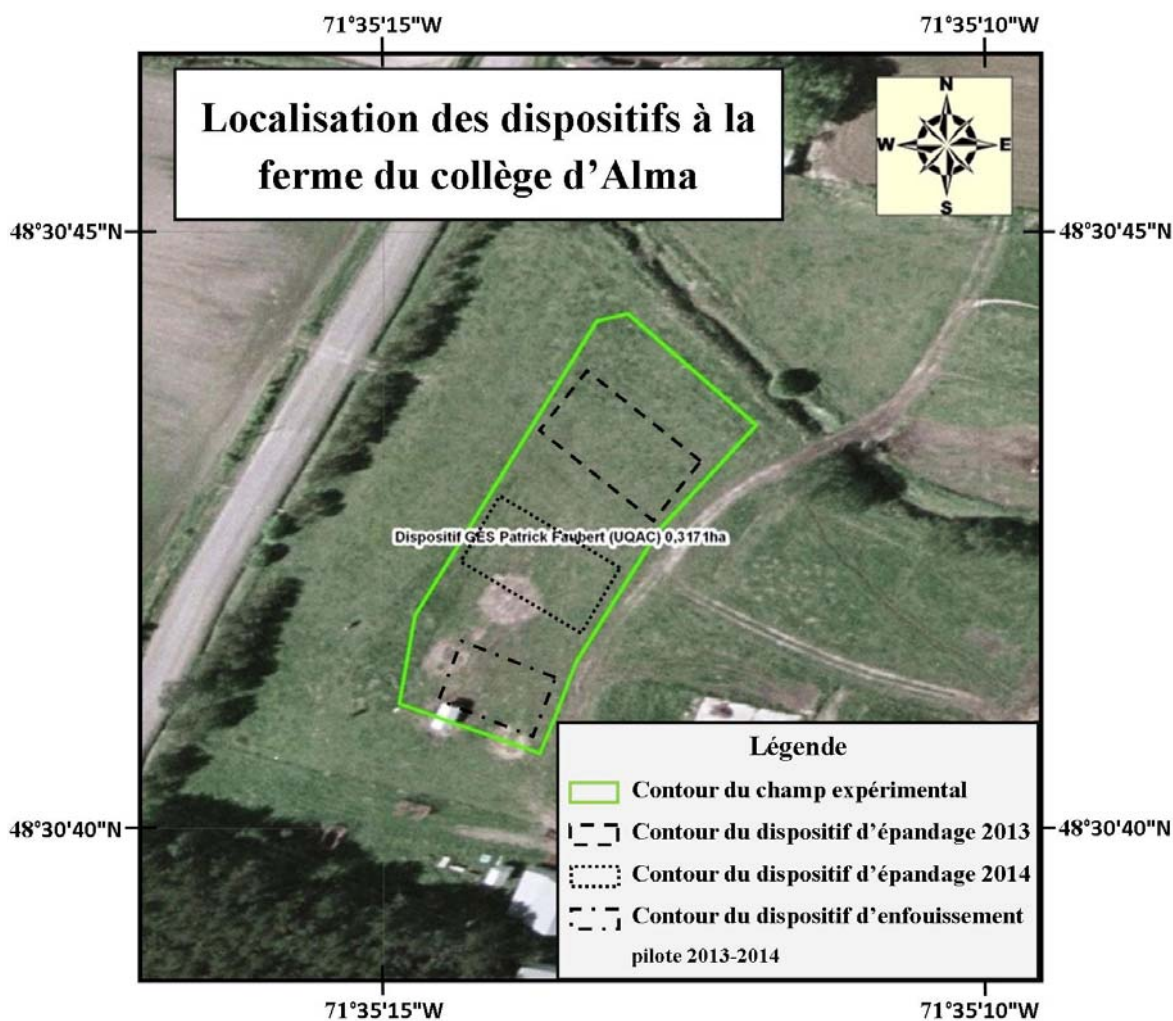


Figure 1 Localisation des dispositifs expérimentaux de mesure des gaz à effet de serre pour l'épandage de biosolides papetiers et l'enfouissement à l'échelle pilote à la ferme du collège d'Alma, Alma, Qc, Canada

2.2. Dispositif expérimental d'enfouissement pilote

Un dispositif *ex-situ* d'enfouissement a dû être aménagé aux fins de l'expérience, puisqu'il n'était pas possible de mesurer les émissions de GES sur un site d'enfouissement en service pour des raisons de sécurité et de logistique.

Le dispositif expérimental d'enfouissement pilote comparait les émissions de BP de deux papetières, soit celles de la papetière Produits forestiers Résolu (PFR) Kénogami,

Saguenay, (Qc) et celles de la papetière PFR Alma, Alma (Qc), ayant des procédés semblables (Tableau 1). Les BP utilisés provenaient de la production journalière du 1^{er} mai et du 9 mai 2013 et dont le ratio journalier de BP primaires et secondaires était de 72:28 et 100:0 pour PFR Kénogami et PFR Alma respectivement (selon les rapports journaliers internes des usines). Ainsi, les BP de PFR Kénogami étaient de type mixte (nommés ci-après BP mixtes). L'usine de PFR Alma générait normalement des BP mixtes, mais les BP reçus pour cette étude étaient à forte dominance primaire (nommés ci-après BP primaires).

Tableau 1 Description générale des papetières ayant fourni des biosolides papetiers pour le dispositif expérimental d'enfouissement pilote (MDDELCC 2015)

Usine	Procédés	Produits	Système de traitement des eaux
PFR Alma	Thermomécanique Trituration de pâte Kraft	Papiers spéciaux à base de pâte thermomécanique, de pâte kraft achetée et de pâte désencrée achetée (papier pour annuaires et papier haute blancheur)	Décanteur, Boues activées
PFR Kénogami	Thermomécanique Trituration de pâte Kraft	Papiers spéciaux	Décanteur, Boues activées

La répartition des BP mixtes et des BP primaires dans le dispositif expérimental a été effectuée de manière aléatoire avec trois répétitions chacune, pour un total de six unités expérimentales (Figure 2). Celles-ci avaient un volume de 8 m³ (2 × 2 × 2 m) et étaient espacées entre elles d'une zone tampon de 2 m. Ces fosses ont été aménagées le 15 mai 2013 en creusant au travers de la semelle de labour (20 à 25 cm d'épaisseur), puis dans un horizon C d'argile lourde. Des toiles de polymère imperméables au gaz et à l'eau ont été installées pour recouvrir les parois verticales afin de maintenir des conditions anaérobies, typiques d'un site d'enfouissement et pour empêcher des émissions latérales. Une couche moyenne de 0,20 m de gravier tamisé à 0,019 m net (¾ de pouce net) a été épandue au fond des fosses afin de permettre un drainage et éviter une accumulation excessive d'eau (Figure 3).

Dispositif d'enfouissement pilote 2013-2014

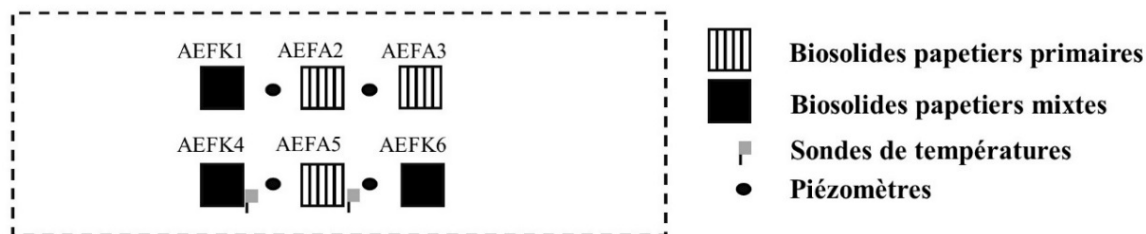


Figure 2 Dispositif d'enfouissement pilote de biosolides papetiers mixtes et de biosolides papetiers primaires répartis de manière aléatoire avec trois répétitions par type de biosolides, pour un total de six unités expérimentales, dont les gaz à effet de serre ont été mesurés au cours des saisons 2013 et 2014 sans couvert nival. Les unités expérimentales AEFK4 et AEFA5 contenaient chacune quatre sondes de température à des profondeurs différentes (-0,1, -0,5, -1,0 et -2,0 m). Quatre piézomètres allant jusqu'à 2,0 m de profondeur étaient installés entre les unités expérimentales.

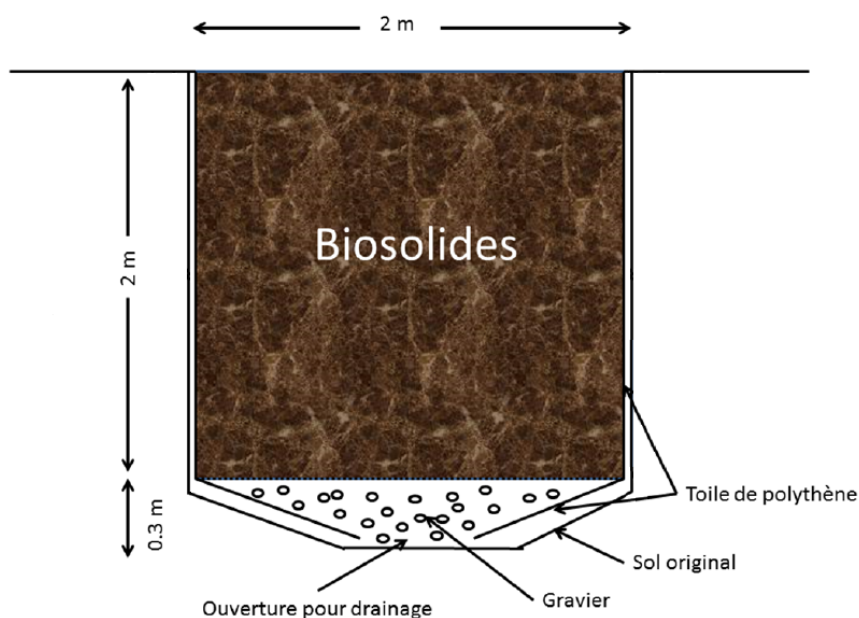


Figure 3 Schéma d'aménagement d'une fosse d'enfouissement pilote contenant un volume de 8 m^3 ($2 \times 2 \times 2 \text{ m}$) de biosolides papetiers, dont les parois verticales étaient recouvertes de toile de polymère imperméable au gaz et à l'eau et dont le fond était constitué d'une couche moyenne de 0,20 m de gravier tamisé à 0,019 m net (3/4 de pouce net).

Les BP ont été acheminés par transporteurs lourds, entreposés en amas compact sur la dalle de béton de la ferme et recouverts d'une toile de polythène pour réduire les pertes d'éléments fertilisants par ruissellement et par volatilisation. Les périodes d'entreposage des BP ont duré 14 et 6 jours respectivement pour les BP mixtes et BP primaires.

Les caractéristiques physico-chimiques de deux types de BP préalablement à l'enfouissement ne sont pas disponibles suite à une erreur d'échantillonnage. Les données indirectes utilisées sont les caractéristiques des échantillons prélevés à la fin de la saison 2013 en profondeur dans les fosses d'enfouissement pilotes avec une sonde russe (n=3; profondeur de 1,50-2,00 m; cuillère de 0,50 m de longueur, 0,045 m de diamètre; Tableau 2). Leurs compositions chimiques ont été analysées par un laboratoire agréé avec des méthodes standard pour biosolides (AgroEnviroLab, La Pocatière, Qc, Canada). Les BP dans les fosses d'enfouissement pilotes ont été échantillonnées à la fin de la saison 2014 entre 0,75 et 1,25 m de profondeur avec la sonde russe (n=3; Tableau 2) pour déterminer leur densité.

Tableau 2 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des caractéristiques physico-chimiques des types de biosolides papetiers enfouis entre 0,75 et 1,25 m de profondeur à l'échelle pilote

Types de BP	Caractéristiques				
	pH	N total kg t _{sèche} ⁻¹	C total kg t _{sèche} ⁻¹	Ratio C:N	Densité g cm ⁻³
BP mixtes	7,6 \pm 0,2	21,8 \pm 1,9	346,9 \pm 27,3	15,9 \pm 0,2	0,179 \pm 0,003
BP primaires	4,8 \pm 0,1	8,2 \pm 0,6	458,8 \pm 3,0	56,1 \pm 3,8	0,152 \pm 0,004

BP, Biosolides papetiers

2.3. Dispositif expérimental d'épandage agricole

Le dispositif d'épandage agricole était installé sur deux sections adjacentes du champ ayant toutes deux un sol à texture fine, soit un loam-argileux (34% d'argile, 34% de limon, 32% de sable, pH = 7,6) avec 6% de matière organique. La section la plus septentrionale et la section centrale ont été utilisées en 2013 et en 2014, respectivement (Figure 1), et ont été précédemment cultivées en triticales (\times *Triticosecale*) et en blé de printemps de la variété

Touran (*Triticum aestivum* var. Touran) respectivement. Ces deux sections de champ ont été labourées à l'automne (profondeur de 0,20-0,25 m), puis hersées au printemps (profondeur de 0,10 m) préalablement à l'aménagement des dispositifs d'épandage agricole.

Le dispositif expérimental d'épandage agricole a été utilisé pour évaluer six traitements de fertilisation dans lesquels les apports en azote fournis par des BP mixtes remplaçaient les apports d'azote fournis par un engrais minéral (Urée granulaire, NPK 46-0-0) dans les proportions suivantes : témoin, 0%, 25%, 50%, 75% et 100% (Figure 4). Le dispositif comptait 18 unités expérimentales d'une superficie de 4 m² (2 m × 2 m) où les traitements étaient répétés trois fois en blocs complets et aléatoires. Toutes les unités ont été séparées par des zones tampons de 2 m et les blocs ont été aménagés en lignes, perpendiculairement à la pente naturelle du champ. Les matières fertilisantes ont été épandues manuellement, puis incorporées au sol par un motoculteur à une profondeur de 0,10 m. Du blé Touran (*T. aestivum* var. Touran) a ensuite été semé avec un semoir en ligne conventionnel mécanique de 3 m de largeur (marque Khun; modèle, Prémia 300) à 180 kg ha⁻¹ et avec un espacement moyen de 0,13 m entre les rangs. Les traitements de fertilisation suivaient l'approche agronomique recommandée par le Centre de référence en agriculture et agroalimentaire du Québec (CRAAQ) (Hébert *et al.* 2010) pour répondre à une demande en azote disponible de 120 kg N ha⁻¹. Les unités expérimentales ont été aménagées le 28 mai 2013 et le 28 mai 2014 et ont été détruites lors du travail automnal des sols le 28 octobre 2013 et le 30 octobre 2014.

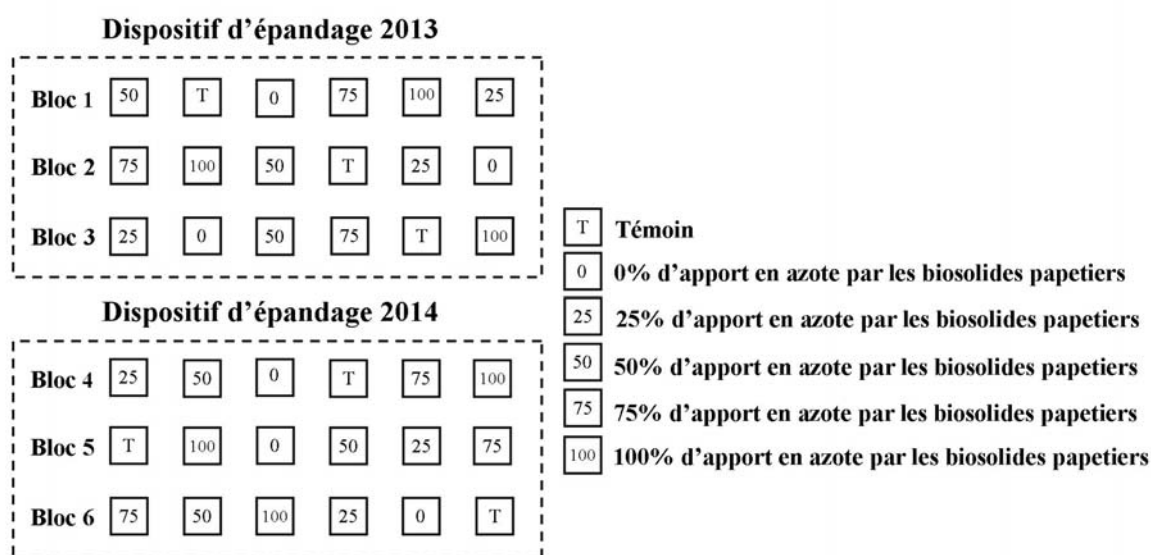


Figure 4 Deux dispositifs d'épandage agricole adjacents comptant chacun 18 unités expérimentales et testant six traitements de fertilisation répétés trois fois en blocs complets et aléatoires, dont les gaz à effet de serre ont été suivis lors d'une saison sans couvert nival. Les traitements de fertilisation consistaient en la substitution de l'apport en azote fourni par un engrais minéral par l'apport en azote fourni par des biosolides papetiers mixtes dans les proportions suivantes : témoin, 0%, 25%, 50%, 75%, 100%.

Les BP mixtes utilisés provenaient de la production journalière de PFR Kénogami du 1^{er} mai 2013 (idem que l'enfouissement) et du 29 avril 2014. Ils ont été acheminés par transporteur lourd en 2013 et par camionnette en 2014 et entreposés tel que décrit pour le dispositif d'enfouissement sur une période de 27 et 29 jours pour 2013 et 2014 respectivement.

Les BP ont été échantillonnés par une firme d'agronomie agréée (Solution 3R, Jonquière, Qc, Canada) en 2013, trois semaines avant application des traitements. Ils ont été échantillonnés à l'interne par nous-mêmes en 2014, trois semaines avant application des traitements et le jour même, par échantillon composite de six sous-échantillons provenant de la zone centrale de leur amas, soit à plus d'un mètre de la surface. Leurs compositions chimiques ont été analysées par un laboratoire agréé avec des méthodes standard pour biosolides (AgroEnviroLab, La Pocatière, Qc, Canada), ainsi qu'à l'interne par nous-mêmes (UQAC) en collaboration avec l'équipe de chercheurs d'Agriculture et

Agroalimentaire Canada (AAC) à Québec, par les méthodes décrites ultérieurement (Tableau 3).

Tableau 3 Caractéristiques physico-chimiques des biosolides papetiers utilisés en fertilisation agricole lors des saisons 2013 et 2014

Caractéristiques	Unités	Sources	BP 2013 T = -22 jours (6 mai 2013)	BP 2014 T = -21 jours (7 mai 2014)	BP 2014 T = 0 jour (28 mai 2014)
pH		Agro-Enviro-Lab	7,8	6,8	N/A
pH		UQAC	N/A	7,49	8,46
Matière sèche	%	Agro-Enviro-Lab	40,2	30,5	27,7
N total brut	kg N t _{hum} ⁻¹	Agro-Enviro-Lab	8,78	5,57	5,98
N total	kg N t _{seche} ⁻¹	Calcul	21,8	18,3	21,6
NH ₄ ⁺	mg N kg _{sec} ⁻¹	UQAC-AAC	N/A	5246,8	6054,5
NO ₃ ⁻	mg N kg _{sec} ⁻¹	UQAC-AAC	N/A	0,0	34,0
Ratio C/N		Agro-Enviro-Lab	17,8	20,8	17,2
C total	kg C t _{seche} ⁻¹	Calcul	388,8	379,9	371,3

T, Temps en nombre de jour depuis la fertilisation agricole

UQAC, échantillons analysés dans les laboratoires de l'Université du Québec à Chicoutimi, Saguenay, Qc.

UQAC-AAC, échantillons analysés en collaboration entre les laboratoires de l'UQAC et Agriculture et Agroalimentaire Canada, Québec, Qc

Les doses d'engrais minéral pour les différents traitements ont été calculées en suivant les recommandations du fabricant et celles des BP à épandre (DBP, t ha⁻¹) ont été calculées en utilisant l'équation suivante :

Équation 1 Dose de biosolides papetiers à épandre

$$DBP = \frac{(BAC - AAS) \times (\%AABP/100\%)}{\left(\frac{CABP \times CEBP}{FPEBP}\right)}$$

où BAC (kg N ha⁻¹) est le besoin en azote de la culture de blé de 120 kg N ha⁻¹; AAS (kg N ha⁻¹) est l'apport d'azote par le sol évalué à 10,5 kg N ha⁻¹; %AABP (%) est le pourcentage d'apport d'azote par les BP pour les différents traitements; CABP (kg N t⁻¹ BP) est le contenu en azote dans les BP; CEBP est le coefficient d'efficacité des BP évalué à 0,17 (Hébert *et al.* 2010); FPEBP est le facteur de perte d'efficacité des BP évalué à 1 (Hébert *et al.* 2010). Les DBP ont été calculées avec le contenu en azote caractérisé sur les BP

entreposés trois semaines avant épandage pour les deux saisons (Tableau 4). Pour la saison 2014, les contenus en azote appliqués lors de l'épandage ont été ajustés en fonction de la seconde analyse chimique.

Tableau 4 Caractéristiques des six traitements de fertilisation agricole avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014

Traitements ‡	Doses de BP appliquées $t_{\text{hum}} \text{ ha}^{-1}$	N organique (BP) total épandu kg ha^{-1}	N organique (BP) disponible* kg ha^{-1}	Doses N minéral appliquées kg ha^{-1}	Apport en N du sol kg ha^{-1}	N total disponible* kg ha^{-1}	N total appliqué kg ha^{-1}	C total appliqué kg ha^{-1}
2013								
Témoin	0	0	0	0	10,5	10,5	0	0
0% BP	0	0	0	109,5	10,5	120	109,5	0
25% BP	18,3	160,7	27,4	82,1	10,5	120	242,8	2854
50% BP	36,6	321,3	54,8	54,8	10,5	120	376,1	5709
75% BP	54,9	482,0	82,1	27,4	10,5	120	509,4	8563
100% BP	73,2	642,7	109,5	0	10,5	120	642,7	11418
2014								
Témoin	0	0	0	0	10,5	10,5	0	0
0% BP	0	0	0	109,5	10,5	120	109,5	0
25% BP	28,9	172,9	29,4	82,1	10,5	122	255	2975
50% BP	57,8	345,8	58,8	54,8	10,5	124	400,5	5950
75% BP	86,7	518,6	88,2	27,4	10,5	126	546	8926
100% BP	115,6	691,5	117,6	0	10,5	128,1	691,5	11901

* Disponibilité calculée selon le guide du CRAAQ avec les caractéristiques chimiques du 6 mai 2013 et du 28 mai 2014

‡ 0% BP; 25% BP; 50% BP; 75% BP; 100% BP; pourcentage des apports en azote disponible pour la culture par les biosolides papetiers (BP), la balance étant fournie par l'engrais minéral.

2.4. Méthodes d'échantillonnage des gaz

Les émissions de GES ont été mesurées par la méthode de chambre à flux « non-flow-through non-steady-state » de Rochette et Bertrand (2008). Chacune des unités expérimentales du dispositif d'enfouissement pilote et du dispositif d'épandage comptait respectivement deux et une bases d'acrylique insérées à 0,1 m de profondeur dans le sol de façon permanente au cours de la saison de suivi. Les bases du dispositif d'enfouissement pilote ($0,55 \times 0,55 \times 0,14$ m de hauteur) étaient positionnées au centre des unités à 0,2 m l'une de l'autre; une des deux bases, déterminée de manière aléatoire, était échantillonnée par journée de mesure. Les bases du dispositif d'épandage ($0,75 \times 0,15 \times 0,14$ m de

hauteur) étaient orientées parallèlement au rang de blé dans le centre de l'unité expérimentale, ainsi il n'y avait pas de végétation sur les surfaces mesurées pour les émissions de GES. Les échantillons d'air (20 ml) étaient prélevés avec une seringue à travers un septum de caoutchouc à intervalles de 0, 6, 12, 18 minutes après le déploiement des chambres (surface identique aux bases, hauteur de 0,15 m) sur les bases et immédiatement injectés dans des vials de verre pré-évacués de 12 ml (Exetainer, Labco). Les concentrations en N_2O , CH_4 et CO_2 des échantillons ont ensuite été déterminées par chromatographie en phase gazeuse (Models 3800 et 3600, Varian Inc.) dans le laboratoire d'AAC à Québec, Qc.

Les émissions de GES ($E(g)$, $mg\ m^{-2}\ s^{-1}$) ont ainsi été calculées en utilisant l'équation proposée par Rochette et Hutchinson (2005) :

Équation 2 Émissions de gaz à effets de serre

$$E(g) = \frac{\partial G}{\partial t} \times \frac{V}{A} \times \frac{M(m)}{V(m)} \times \left(1 - \frac{e_p}{P}\right)$$

où $\partial G/\partial t$ ($mol\ mol^{-1}\ s^{-1}$) est le taux de changement dans la chambre de la concentration en gaz g d'un échantillon sec au temps $t = 0$; V (m^3) est le volume de la chambre; A (m^2) est la superficie de la chambre; $M(m)$ ($g\ mol^{-1}$) est la masse moléculaire du gaz g et $V(m)$ ($m^3\ mol^{-1}$) est le volume moléculaire de la chambre à la température et pression barométrique P (kPa); e_p (kPa) est la pression partielle de la vapeur d'eau dans la chambre. Une équation polynomiale de second degré était utilisée pour estimer $\partial G/\partial t$ quand la variation des concentrations en gaz dans la chambre était non linéaire. En cas de doute, une relation linéaire était utilisée pour limiter les incertitudes (Rochette et Bertrand 2008).

L'échantillonnage des gaz a été effectué durant la période sans couvert nival entre le 10 juin et 23 octobre 2013 et du 5 mai au 30 octobre 2014 avec des fréquences variables : soit deux à trois fois par semaine lors des quatre premières semaines après application des traitements ou du dégel printanier (pour le dispositif d'enfouissement pilote en 2014), puis hebdomadairement jusqu'à la fin de la saison. Les gaz des dispositifs d'enfouissement et

d'épandage étaient toujours prélevés entre 11:00 et 13:00, ainsi qu'entre 09:00 et 12:00, respectivement.

Les émissions cumulées de N₂O, CH₄ et CO₂ ont été calculées par intégration numérique en supposant des variations linéaires entre les dates d'échantillonnage (Rochette et Bertrand 2008). Le délai de démarrage de l'échantillonnage des gaz en 2013 était non intentionnel et dû à des raisons logistiques. Pour le dispositif d'enfouissement pilote, les émissions cumulées excluent les émissions des 26 premiers jours après enfouissement en 2013, ainsi que la période avec couvert nival entre les saisons 2013 et 2014. Pour le dispositif d'épandage, les émissions non mesurées de N₂O des deux premières semaines de la saison 2013 après application des traitements ont été estimées par extrapolation des patrons d'émissions journalières. Cette extrapolation par intégration numérique linéaire a considéré des émissions non significatives, soit nulles, au cours des sept premiers jours après épandage, puis reliées par unité expérimentale aux premières mesures d'émissions effectuées le 10 juin 2013. Les émissions non mesurées de CH₄ et de CO₂ de la saison 2013, tous traitements confondus, ont été estimées par extrapolation en attribuant le même poids relatif des émissions des deux premières semaines par rapport au reste de la saison que celles mesurées en 2014.

Le FEIF-N₂O (%) pour le dispositif d'épandage agricole, soit le pourcentage de perte sous forme de N₂O de l'azote appliqué, a été calculé selon l'équation suivante:

Équation 3 Facteur d'émissions induites par le fertilisant

$$FEIF-N_2O = \frac{ECf - ECt}{DA} \times 100\%$$

où ECf (kg N₂O-N ha⁻¹) sont les émissions cumulées de la parcelle fertilisée; ECt (kg N₂O-N ha⁻¹) sont les émissions cumulées de la parcelle témoin du même bloc; DA (kg N ha⁻¹) est la dose d'azote totale appliquée dans la parcelle fertilisée.

Les émissions de GES des deux filières de gestion de BP ont été comparées par émissions d'équivalent CO₂, incluant les émissions non biogéniques de CO₂ et les émissions

biogéniques et non biogéniques de N_2O et de CH_4 , par tonne sèche de BP gérés (t éq. CO_2 t⁻¹ BP secs). Ces émissions d'équivalents CO_2 de N_2O , de CH_4 et de CO_2 ont été calculées avec les potentiels de réchauffement global (PRG) de 265, 28 et 1, respectivement (IPCC 2013). Pour la gestion par enfouissement, seules les émissions de N_2O et de CH_4 ont été comptabilisées en émissions d'équivalent CO_2 ; les émissions de CO_2 mesurées étant biogéniques, puisqu'associées à la décomposition aérobie et anaérobie des BP. Les émissions de surface des fosses d'enfouissement ont ensuite été associées aux deux mètres d'épaisseur de BP dans les fosses. Pour la gestion par épandage, seules les émissions de N_2O ont été comptabilisées en émissions d'équivalent CO_2 ; d'une part, parce que les émissions de CH_4 attendues pour un sol agricole non-submergé (c.-à-d. excluant les rizières et territoires immergés) et aménagé intensivement sont négligeables (Le Mer et Roger 2001; Ball *et al.* 2004); d'autre part, parce que les émissions de CO_2 ont été considérées comme biogéniques par défaut puisque le dispositif d'épandage ne permettait pas de distinguer les sources d'émissions de CO_2 du sol ayant un impact sur le bilan carbone (Kuzakov 2006). De plus, les fertilisants organiques à différentes doses épandues peuvent tant augmenter que diminuer les stocks de carbone dans les sols (Angers *et al.* 2009; Thangarajan *et al.* 2013).

2.5. Méthodes d'échantillonnage et d'analyse des BP et des conditions environnementales du dispositif d'enfouissement

Les BP de surface des fosses d'enfouissement pilotes ont été échantillonnées (trois sous-échantillons regroupés et homogénéisés dans un sac de plastique par échantillon composite; un échantillon composite par unité expérimentale) avec une tarière Edelman (0,00-0,20 m) une fois par semaine durant les six premières semaines concomitantes au début de l'échantillonnage des gaz, puis une fois par mois, au cours des saisons 2013 et 2014. Ces échantillons de BP ont été conservés à 4°C, puis analysés ou extraits dans les 24h. Le pH des échantillons de BP a été mesuré avec un pH-mètre en utilisant 5 g de BP dans une solution de 10 ml d'eau distillée désionisée. L'azote minéral (NO_3^- ; NH_4^+) des BP a été extrait avec un solvant d'extraction de 1 mol L⁻¹ KCl (25 g de sol : 125 ml de solvant). Les

solutions ont été agitées mécaniquement durant 60 minutes, centrifugées à $3000 \times g$ durant 10 minutes et filtrées dans des papiers filtres (Whatman #42) prélavés avec le solvant d'extraction de 1 mol L^{-1} KCl. Les concentrations en NO_3^- et NH_4^+ des extraits ont été mesurées avec un colorimètre automatique à débit continu (QuickChem FIA+Series 8000, Lachat Instruments) dans les laboratoires d'AAC à Québec selon la méthode utilisée par Chantigny *et al.* (2013).

Les BP des fosses d'enfouissement pilotes ont aussi été échantillonnées à trois profondeurs différentes à la fin des saisons 2013 et 2014 avec une tarière Edelman (0,00-0,20 m) et avec une sonde russe (cuillère de 0,50 m de longueur, 0,045 m de diamètre; profondeurs de 0,75-1,25 m et 1,50-2,00 m), afin d'analyser leurs caractéristiques chimiques selon les méthodes standard pour biosolides (AgroEnviroLab, La Pocatière, Qc, Canada).

Le niveau de la nappe phréatique dans les fosses d'enfouissement pilotes a été estimé avec quatre piézomètres (cylindre de métal perforé à intervalle de 0,1m; longueur de 2,3 m), installés entre les fosses d'enfouissement pilotes (Figure 2) le 3 octobre 2013. Des relevés ont été effectués lors de l'échantillonnage des gaz subséquents, avec une tubulure (diamètre interne de 3 mm) dans laquelle était soufflé de l'air et qui était insérée dans les piézomètres jusqu'à audition de remous. Le niveau moyen de la nappe phréatique était mesuré en fonction de la longueur moyenne de tubulure insérée dans les piézomètres à partir du niveau du sol.

Les températures de deux fosses d'enfouissement pilotes (AEFK4 et AEFA5, Figure 2) avec des types de BP différents ont été mesurées en continu durant les deux années de suivi à quatre niveaux de profondeur (0,1, 0,5, 1,0, 2,0 m) avec des sondes de température insérées pour toute la durée de mesure des gaz (15 mai 2013 au 30 octobre 2014; U12-008 Data Logger, Onset HOBO data loggers). Un même dispositif a été installé et suivi entre novembre 2013 et novembre 2014 sur le site d'enfouissement de l'usine PFR Kénogami, où l'âge des BP du premier mètre en surface était estimé entre un et deux ans par les opérateurs de la compagnie (Conversation personnelle avec un responsable du service technique de l'usine PFR Kénogami).

La pluviométrie sur le site d'étude a été mesurée en temps réel avec un pluviomètre électronique (S-RGB-M002 Sensor, Onset HOBO data loggers) durant les deux saisons d'échantillonnage. Des lectures de pression atmosphérique, d'humidité et de température de l'air ont été prises avec une station météo portative (Fishing/Hunting Handheld PFSH2, Pyle Sports) au début et à la fin de l'échantillonnage de GES du dispositif. Dans chaque unité expérimentale durant la période d'échantillonnage des GES, la température des BP à 0,1 m de profondeur a été mesurée avec un thermomètre (FlashCheck Lollipop Thermometer model #11050, DeltaTRAK) et le contenu volumétrique en eau (CVE) des BP sur le premier 0,20 m en 2013 et sur le premier 0,12 m en 2014 a été mesuré avec un humidimètre de sol portatif (Fieldscout TDR-100, Spectrum Technologies).

L'EPEE (% , $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) approximatif à la surface des BP a été calculé en utilisant l'équation suivante (Gagnon *et al.* 2011):

Équation 4 Espace des pores emplis d'eau à la surface des biosolides papetiers calculé avec le contenu volumétrique en eau

$$EPEE = \frac{CVE}{1 - (\frac{DS}{DP})} \times 100\%$$

où CVE ($\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) est le contenu volumétrique en eau mesuré à chaque jour d'échantillonnage des GES; DS (g cm^{-3}) est la densité des BP approximée à la surface comme comparable avec celle mesurée entre 0,75 et 1,25 m de profondeur et DP est la densité des particules assumant une densité de $1,05 \text{ g cm}^{-3}$ pour le sol organique (Hao *et al.* 2008).

2.6. Méthodes d'échantillonnage et d'analyse des sols, du blé et des conditions environnementales du dispositif d'épandage

Les sols des unités expérimentales d'épandage ont été échantillonnés (six sous-échantillons regroupés et homogénéisés dans un sac de plastique par échantillon composite) en surface (0,0-0,2 m) avec une sonde pédologique tubulaire (diamètre de 0,02 m) suite à l'application des traitements et à la fin de la saison (13 juin et 16 octobre 2013; 3 juin et 14 octobre

2014). La moitié de ces échantillons composites ont été séchés à l'air libre pour effectuer des analyses standard de fertilité agronomique (AgroEnviroLab, La Pocatière, Qc, Canada). Les sols ont aussi été échantillonnés (trois sous-échantillons par échantillon composite) deux fois avant l'échantillonnage des gaz (uniquement pour la saison 2014), une fois par semaine les six premières semaines concomitantes au début de l'échantillonnage des gaz, puis une fois par mois jusqu'à la fin des saisons 2013 et 2014. Ces échantillons de sol ont été conservés à 4°C, puis analysés ou extraits dans les 24h. L'analyse du pH et l'extraction de l'azote minérale ont été effectuées selon les méthodes décrites précédemment. Les expositions aux nitrates, une mesure intégrée de la disponibilité de substrat (Burton *et al.* 2008) ont été calculées par intégration numérique en supposant des variations linéaires entre les dates d'échantillonnage, pour les deux saisons de suivi.

Le contenu en matière organique des sols des unités expérimentales d'épandage de 2014 a été analysé avant et après traitement selon la méthode d'analyse *MA. 100 – S.T. 1.1 Détermination des solides totaux et des solides totaux volatils : méthode gravimétrique* du Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec (CEAEQ 2012) pour chacune des 18 unités expérimentales avant et après traitement (trois et six sous-échantillons par échantillon composite respectivement) (0,0-0,2 m), pour un total de 36 échantillons composites. Ceux-ci ont été préalablement séchés durant 24 heures dans une étuve à 150°C avant d'être broyés et tamisés dans un treillis de 2 mm. Les analyses du contenu en matière organique des 36 échantillons composites ont été répétées trois fois en blocs complets, bonifiés de blancs, pour un total de 120 échantillons traités. Ces échantillons ont été séchés à 150°C durant plus de 16 heures, refroidis au dessiccateur durant 4 heures, pesés, puis incinérés dans un four à moufle à 375°C durant plus de 16 heures, refroidis au dessiccateur durant 4 heures et pesés. Les creusets de porcelaine ont été préalablement conditionnés au four à moufle dans les mêmes conditions que les échantillons traités. Une moyenne des contenus en matière organique des sols avant et après application des traitements a été calculée pour chaque parcelle aux fins de traitement statistique.

La densité des sols des unités d'épandage (sur 0,06 m entre la surface et 0,15 m de profondeur) a été échantillonnée en triplicata par unité le 6 août 2013, ainsi que le 11 juin et

12 août 2014 avec une sonde marteau. La densité a été mesurée selon la méthode de Culley (1993).

Le blé a été récolté manuellement à la faux le 27 septembre 2013 et le 16 septembre 2014 à maturité, soit entre les stades de développement 90 et 93 selon l'échelle de Zadoks (Zadoks *et al.* 1974). Lors de ces récoltes, un échantillon de blé en sous-parcelle (0,4 m par 0,7 m) a été prélevé à la main pour chaque unité expérimentale. Les échantillons de grain et de paille ont été broyés à 0,25 et 1 mm respectivement. Les concentrations en azote ont été mesurées en digestion acide ($\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{SeO}_3\text{-H}_2\text{O}_2$) (Isaac et Johnson 1976) avec le colorimètre automatique à débit continu décrit précédemment, appliquant la procédure nitroprusside-salicylate pour l'azote total (méthode Lachat 13-107-06-2-E), dans le laboratoire AAC, Québec.

Le coefficient d'utilisation de l'azote (CUA, %) du blé a été calculé selon l'équation suivante (Tremblay *et al.* 2010) :

Équation 5 Coefficient d'utilisation de l'azote

$$CUA = \frac{PAf - PAt}{DA} \times 100\%$$

où PAF (kg N ha⁻¹) est le prélèvement d'azote par la partie aérienne du blé (paille et grain) dans la parcelle fertilisée; PAt (kg N ha⁻¹) est le prélèvement d'azote par la partie aérienne du blé (paille et grain) dans la parcelle témoin du même bloc; DA (kg N ha⁻¹) est la dose d'azote totale appliquée dans la parcelle fertilisée.

Les excédents en azote dans le sol (EAS, kg N ha⁻¹) ont été calculés selon l'équation suivante (van Groenigen *et al.* 2010) :

Équation 6 Excédents en azote dans le sol

$$EAS = DA - PA$$

où DA (kg N ha⁻¹) est la dose d'azote totale appliquée dans la parcelle fertilisée; PA (kg N ha⁻¹) est le prélèvement d'azote par la partie aérienne du blé dans la parcelle.

La pluviométrie sur le site d'étude a été mesurée en temps réel avec le pluviomètre électronique décrit précédemment (section 2.5). Des lectures de pression atmosphérique, d'humidité et de température de l'air ont été prises au début et à la fin de l'échantillonnage de GES de chaque bloc des dispositifs avec la station météo portative décrite précédemment (section 2.5). Dans chaque unité expérimentale durant la période d'échantillonnage des GES, la température du sol à 0,1 m de profondeur et le contenu volumétrique en eau du sol (CVES) sur le premier 0,20 m en 2013 et sur le premier 0,12 m en 2014 ont été mesurés avec le thermomètre et avec l'humidimètre de sol portatif décrit précédemment.

L'EPEE (% , $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) journalier a été calculé avec le CVES (pour la figure 8, h) en utilisant l'équation suivante (Gagnon *et al.* 2011) :

Équation 7 Espace des pores emplis d'eau calculé avec le contenu volumétrique en eau du sol

$$EPEE = \frac{CVES}{1 - (\frac{DS}{DP})} \times 100\%$$

où CVES ($\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) est le contenu volumétrique en eau du sol mesuré à chaque jour d'échantillonnage des GES; DS (g cm^{-3}) est la densité du sol et DP (g cm^{-3}) est la densité des particules assumant une densité minérale de $2,65 \text{ g cm}^{-3}$ pour le sol agricole (Hao *et al.* 2008).

L'EPEE (% , $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) journalier et moyen pour la saison de mesure (pour les figures 10 a, b et 11 a) a été calculé avec le contenu gravimétrique en eau du sol en utilisant l'équation suivante (Hao *et al.* 2008) :

Équation 8 Espace des pores emplis d'eau calculé avec le contenu gravimétrique en eau du sol

$$EPEE = \frac{(\frac{CGES \times DS}{DE})}{1 - (\frac{DS}{DP})} \times 100\%$$

où CGES ($\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) est le contenu gravimétrique en eau du sol; DS (g cm^{-3}) est la densité du sol; DE (g cm^{-3}) est la densité de l'eau assumant une densité de 1 g cm^{-3} à 4°C et DP

(g cm⁻³) est la densité des particules assumant une densité minérale de 2,65 g cm⁻³ pour le sol agricole (Hao *et al.* 2008).

2.7. Analyses statistiques

Les analyses statistiques ont été exécutées avec le logiciel JMP 11.0.0 (SAS institut, Cary, NC, USA). La normalité des données a d'abord été examinée visuellement sur le graphique de distribution des résidus et celles-ci ont subi une transformation logarithmique lorsque nécessaire. Pour le dispositif d'enfouissement, l'effet du type de BP sur les émissions cumulées de GES de surface a été testé par des analyses de la variance (ANOVA) avec le type de BP en facteur fixe, avec une valeur de significativité de $\alpha=0,05$. Les effets du type de BP et du temps sur les caractéristiques journalières des BP en surface des fosses ont été testés par une ANOVA en mesures répétées (ANOVAR) avec le type de BP comme facteur inter-sujet et le jour comme facteur intra-sujet; le test de Huynh-Feldt (H-F) a été utilisé pour déterminer la valeur de P des facteurs intra-sujet, avec une valeur de significativité de $\alpha=0,05$. Les effets du type de BP, de la profondeur et du temps sur les caractéristiques chimiques des BP ont été testés avec des ANOVA factorielles complètes avec le type de BP, la profondeur et la saison comme facteurs fixes, ajoutés du facteur type de BP imbriqué dans le facteur parcelle aléatoire; les différences significatives ont été testées par contrastes des moyennes de moindres carrés avec le *t* de Student et avec une valeur de significativité de $\alpha=0,10$.

Pour le dispositif d'épandage, l'effet de l'ajout de matière organique par l'épandage de BP sur le contenu en matière organique du sol des unités expérimentales de 2014 avant application et après application des traitements a été testé avec une ANOVA ayant traitement et période comme facteurs fixes et bloc comme facteur aléatoire. Un contraste orthogonal polynomial à un degré de liberté a été effectué en test post-hoc, soit l'augmentation linéaire de la dose de BP sur l'interaction des facteurs traitement et période (Témoin et 0%, 25%, 50%, 75%, 100%), avec une valeur de significativité de $\alpha=0,05$. L'effet du traitement de substitution de l'azote minéral par l'azote des BP sur les émissions

cumulées de GES de surface, le FEIF-N₂O, les émissions de N₂O aux rendements, le prélèvement en azote par la partie aérienne du blé, l'exposition aux nitrates, le CUA et l'excédent en azote du sol ont été testés par des ANOVA avec traitement et saison en facteurs fixes et bloc en facteur aléatoire. Deux contrastes orthogonaux et trois contrastes orthogonaux polynomiaux à un degré de liberté ont été effectués en test post-hoc, soit Témoin vs Fertilisation (0%, 25%, 50%, 75%, 100%); Minéral (0%) vs BP (100%); ainsi que Substitution linéaire (0%, 25%, 50%, 75%, 100%); Substitution quadratique (0%, 25%, 50%, 75%, 100%) et Substitution cubique (0%, 25%, 50%, 75%, 100%), respectivement, avec une valeur de significativité de $\alpha=0,05$. Les contrastes significatifs retenus pour les analyses sont hiérarchisés comme suit : les contrastes significatifs sur les facteurs croisés priment sur les facteurs simples, puis le contraste orthogonal polynômial significatif ayant le plus grand polynôme prime sur les autres contrastes polynômiaux significatifs (Quinn et Keough 2002). La relation entre les EPEE moyens (calculés avec la teneur en eau gravimétrique), l'exposition aux CO₂ et l'exposition aux nitrates avec les émissions cumulatives de N₂O ont été testées par régression linéaire, de même que la relation entre le CUA et les émissions de N₂O au rendement de l'azote prélevé dans la partie aérienne du blé, avec une valeur de significativité de $\alpha=0,10$.

3. Résultats

3.1. Résultats du dispositif d'enfouissement pilote des BP

3.1.1. Variations saisonnières des émissions et facteurs de contrôle

Les plus grandes émissions journalières de N_2O , CH_4 et CO_2 des fosses d'enfouissement pilotes des BP mixtes ont été observées lors des deux premiers mois de suivi après construction des fosses, avec des émissions maximales observées de $233 \pm 42 \text{ mg N}_2\text{O m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, $3480 \pm 1265 \text{ mg CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ et $20306 \pm 3484 \text{ mg CO}_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (Figure 5 b, d, e). Après avoir atteint leur pic de concentration en juin 2013, les émissions de N_2O et de CH_4 ont progressivement diminué au cours du mois suivant et se sont ensuite maintenues à de plus faibles niveaux jusqu'à la fin de la période de mesure sans couvert nival.

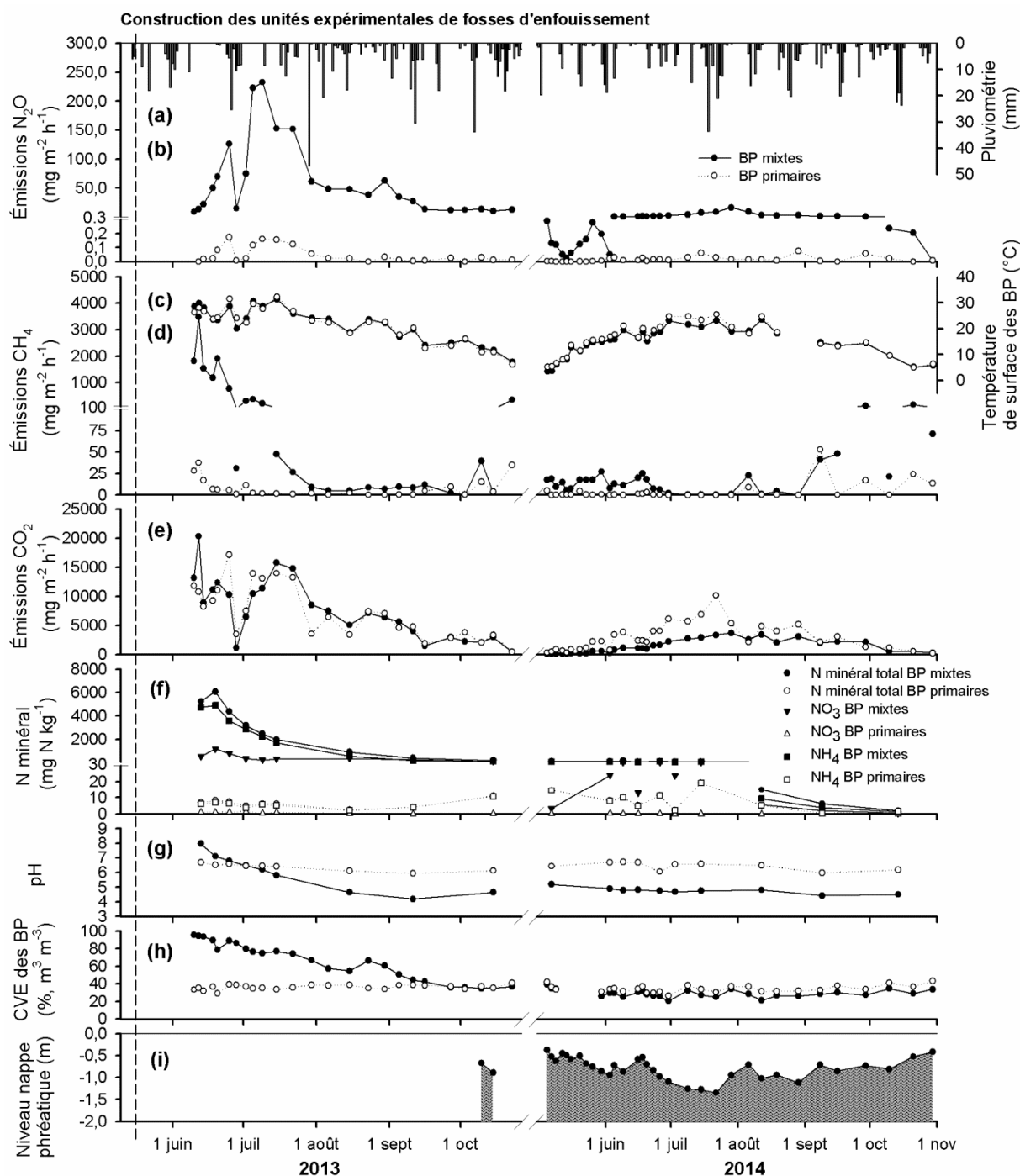


Figure 5 Évolutions saisonnières des émissions de surface et des conditions environnementales pour (a) la pluviométrie ($n=1$), (b) le N_2O , (moyennes; $n=3$) (c) la température de surface des biosolides papetiers (BP; moyennes; $n=3$), (d) le CH_4 , (moyennes; $n=3$) (e) le CO_2 , (moyennes; $n=3$) (f) les concentrations d'azote minéral (NO_3^- -N, NH_4^+ -N, totales (NO_3^- -N + NH_4^+ -N) (moyennes; $n=3$), (g) le pH, (moyennes; $n=3$) (h) le contenu volumétrique en eau (CVE) des BP (moyennes; $n=3$) et (i) le niveau de la nappe phréatique (moyennes; $n=4$) pour des fosses d'enfouissement pilotes lors des saisons de suivi 2013 et 2014 sans couvert nival pour les BP mixtes et les BP primaires.

Les plus grandes émissions journalières de N_2O et CO_2 des fosses d'enfouissement pilotes des BP primaires ont aussi été observées lors des deux premiers mois après construction des fosses, avec des émissions maximales de $0,17 \pm 0,17 \text{ mg N}_2\text{O m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ et $17124 \pm 2072 \text{ mg CO}_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$; toutefois, la plus grande émission journalière de CH_4 s'est produite en septembre 2014 avec $53 \pm 29 \text{ mg CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (Figure 5 b, d, e).

Pour les deux types de BP, les émissions de CH_4 en fin de saison 2013 et en fin de saison 2014 étaient plus importantes que celles observées lors de la période estivale, excluant la période avec le pic d'émissions en juin 2013 (Figure 5 d). Leurs émissions de CO_2 lors de la saison 2013 suite au pic d'émission après enfouissement ont toutes deux périclité progressivement; en 2014, leurs émissions de CO_2 ont augmenté progressivement de la période de dégel printanier jusqu'à la fin juillet, puis diminué jusqu'à l'automne (Figure 5 e).

Les émissions saisonnières cumulées de surface se sont distinguées entre les deux types de BP pour le N_2O et le CH_4 lors de la première année, puis pour le N_2O et le CO_2 lors de la seconde année (Tableau 5). La majorité des émissions de N_2O et CO_2 de chacun des types de BP a été observée lors de la première année, soit respectivement 95 et 75% pour les BP mixtes, ainsi que 63 et 61% pour les BP primaires. Toutefois, la majorité des émissions de CH_4 des BP mixtes (86%) ont été émises la première année alors que la majorité de celles des BP primaires (60%) ont été émises lors de la seconde.

Tableau 5 Moyennes ($n=3$; \pm erreur standard) des émissions cumulées de surface et relative (%) pour le N_2O , CH_4 et CO_2 par types de biosolides papetiers (BP) enfouis à l'échelle pilote pour les saisons 2013 et 2014 sans couvert nival individuellement et pour la période de suivi complète 2013-2014. Les valeurs de P des ANOVA avec type en facteur fixe sont présentées.

Types de BP	Émissions en 2013			Émissions en 2014			Émissions en 2013 et 2014		
	N_2O	CH_4	CO_2	N_2O	CH_4	CO_2	N_2O	CH_4	CO_2
	kg ha ⁻¹								
BP mixtes	1 955 ± 165	7 882 $\pm 1 390$	224 440 $\pm 10 991$	109 ± 23	1 324 ± 443	74 886 $\pm 11 592$	2 063 ± 145	9 207 $\pm 1 561$	299 325 $\pm 2 476$
BP primaires	1,47 $\pm 0,58$	175 ± 53	215 577 $\pm 31 126$	0,86 $\pm 0,29$	267 ± 143	137 034 $\pm 12 818$	2,32 $\pm 0,77$	442 ± 114	352 611 $\pm 43 067$
	%								
BP mixtes	95	86	75	5	14	25	100	100	100
BP primaires	63	40	61	37	60	39	100	100	100
<i>Contraste</i>				<i>Valeurs de P</i>					
BP mixtes vs BP primaires	<.0001*	0,0005*	0,7196	<.0001*	0,0848	0,0337*	<.0001*	0,0009*	0,3032

Le principal pic de concentration d'azote minéral total à la surface des BP mixtes a été observé à la mi-juin, soit environ un mois après enfouissement, et était de 6074 ± 839 mg N kg⁻¹, majoritairement (81%) sous forme de NH_4^+ (Figure 5 f). Quelques pics de concentration d'azote minéral total ont été observés la seconde année, mais d'un ordre de grandeur plus faible, le plus élevé ayant été de 143 ± 25 mg N kg⁻¹. Comparativement, les pics de concentrations d'azote minéral total à la surface des BP primaires étaient inférieurs à ceux des BP mixtes (Tableau 6) de trois à deux ordres de grandeur en 2013 et un ordre de grandeur inférieur en 2014 (Figure 5 f). Les patrons de variation du pH des BP de surface étaient significativement distincts en fonction du type de BP en interaction avec les jours (Figure 5 g; Tableau 6). Le pH de surface des BP mixtes initialement observé à 7,9 a diminué progressivement jusqu'au début de septembre 2013, puis s'est stabilisé entre 4,2 et 4,9 au cours du reste de l'étude. Comparativement, très peu de variations de pH ont été observées à la surface des BP primaires qui variait entre 6,7 et 5,9, au cours des deux saisons de suivi. Les patrons de variation du CVE des BP de surface étaient aussi significativement distincts en fonction du type de BP en interaction avec les jours (Figure 5 h; Tableau 6). Les CVE de surface des BP mixtes, avoisinant les 95% au début de juin 2013 (EPEE approximatifs avoisinant à 100 % m³ m⁻³), étaient significativement

supérieurs à ceux des BP primaires jusqu'aux observations de mi-septembre 2013. Les CVE des BP de surface des deux types ont ensuite été semblables jusqu'à la fin de l'étude (EPEE approximatifs entre 24 et 47 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$). La nappe phréatique a varié entre -0,37 et -1,35 m du niveau du sol lors de la période de mesure (Figure 5 i) et son niveau moyen était de -0,78 m.

Tableau 6 Valeurs de P et degré de liberté au numérateur et dénominateur (Ddl num, Ddl demun) des ANOVA en mesures répétées à un facteur inter-sujet (types; facteur fixe) et un facteur intra-sujet (jour; facteur fixe) sur les concentrations de nitrates (NO_3^-) et d'ammonium (NH_4^+), le pH, le contenu volumétrique en eau (CVE), ainsi que la température (T) des biosolides papetiers en surface dans les fosses d'enfouissement pilotes; le test de Huynh-Feldt (H-F) a été utilisé pour déterminer la valeur de P des facteurs intra-sujets; le taux de significativité est de $\alpha=0,05$ et les valeurs de P des facteurs significatifs retenus pour les analyses sont en gras.

Facteurs	Variables				
	NO_3	NH_4	pH	CVE	T
Type	0,0037* (1, 4)	0,0026* (1, 4)	0,0003* (1, 4)	0,0108* (1, 4)	0,2920 (1, 4)
Jour	0,0001* (3,06, 12,24)	<0,0001* (4,694, 18,78)	<0,0001* (15,2, 60,81)	<0,0001* (9,6802, 38,721)	<0,0001* (24,013, 96,054)
Type*Jour	0,0001* (3,06, 12,24)	<0,0001* (4,694, 18,78)	<0,0001* (15,2, 60,81)	<0,0001* (9,6802, 38,721)	0,0434* (24,013, 96,054)

Les caractéristiques des BP des fosses d'enfouissement pilotes à différentes profondeurs ont évolué au cours des deux saisons de suivi en fonction de différents facteurs (Tableau 7; Figure 6). Le pH a varié significativement en fonction des types de BP en interaction avec les profondeurs; le pH des BP mixtes (0,00 – 0,20 m) < pH des BP primaires (0,75 – 1,25 m) < pH des BP primaires (0,00 – 0,20 m) < pH des BP mixtes (0,75 – 1,25 m) (Figure 6 a). Le pH a aussi évolué significativement en fonction des types de BP en interaction avec les années; le pH des BP primaires en 2013 était plus faible que toutes les autres combinaisons, ces dernières étant semblables entre elles (Figure 6 b). Le contenu d'azote total des BP a varié significativement en fonction des types de BP en interaction avec les profondeurs et avec les années (Figure 6 c). Les contenus d'azote des BP primaires étaient semblables pour toutes les combinaisons de profondeur et d'année. Les contenus d'azote des BP mixtes étaient supérieurs à ceux des BP primaires, hormis le contenu d'azote en surface (0,00 - 0,20 m) en 2014 qui était semblable à celui des BP primaires en surface (0,00 – 0,20 m) en 2013. Les contenus d'azote des BP mixtes en surface

(0,00 – 0,20 m) étaient semblables en 2013 et en 2014, inférieurs au contenu d’azote des BP mixtes (0,75 – 1,25 m) en 2014 et ce dernier inférieur au contenu d’azote des BP mixtes (0,75 – 1,25 m) en 2013. Les contenus en carbone des BP ont évolué significativement en fonction du type; ceux des BP mixtes étant inférieurs à ceux des BP primaires (Figure 6 d). Les contenus en carbone des BP ont aussi évolué significativement en fonction de la profondeur; ceux en surface (0,00 – 0,20 m) étant inférieurs à ceux en profondeur (0,75 – 1,25 m) (Figure 6e). Les ratios C:N des BP ont évolué significativement avec les années de suivi; soit ils ont augmenté de 2013 à 2014 (Figure 6 f). Finalement, les ratios C:N des BP ont aussi varié significativement en fonction des types en interaction avec les profondeurs : le ratio C:N des BP mixtes (0,75 – 1,25 m) < ratio C:N des BP mixtes (0,00 – 0,20 m) < ratio C:N des BP primaires (0,00 – 0,20 m) < ratio C:N des BP primaires (0,75 – 1,25 m) (Figure 6 g).

Tableau 7 Valeur de P des ANOVA factorielles complètes à trois facteurs fixes de deux niveaux chacun, soit types de biosolides papetiers (BP; BP mixtes et BP primaires), profondeur (0,00 – 0,20 et 0,75 – 1,25 m) et année (2013 et 2014) et où le facteur type de BP est imbriqué dans le facteur aléatoire parcelle pour les différentes caractéristiques des BP dans les fosses d’enfouissement pilotes; le taux de significativité est de $\alpha=0,10$ et les valeurs de P des facteurs significatifs retenus pour les analyses sont en gras.

Facteurs	Ddl num	Ddl dénum	Variables			
			pH	N total	C total	C:N
Type	1	4	0,0013*	0,0005*	0,0046*	0,0002*
Profondeur	1	12	<.0001*	0,0016*	0,0008*	0,0040*
Année	1	12	0,1151	0,0207*	0,7541	0,0695*
Type * Profondeur	1	12	<.0001*	<.0001*	0,5511	<.0001*
Type * Année	1	12	0,0048*	0,0704*	0,2840	0,3461
Profondeur * Année	1	12	0,3987	0,0436*	0,8374	0,2294
Type * Profondeur * Année	1	12	0,9598	0,0781*	0,2534	0,8909

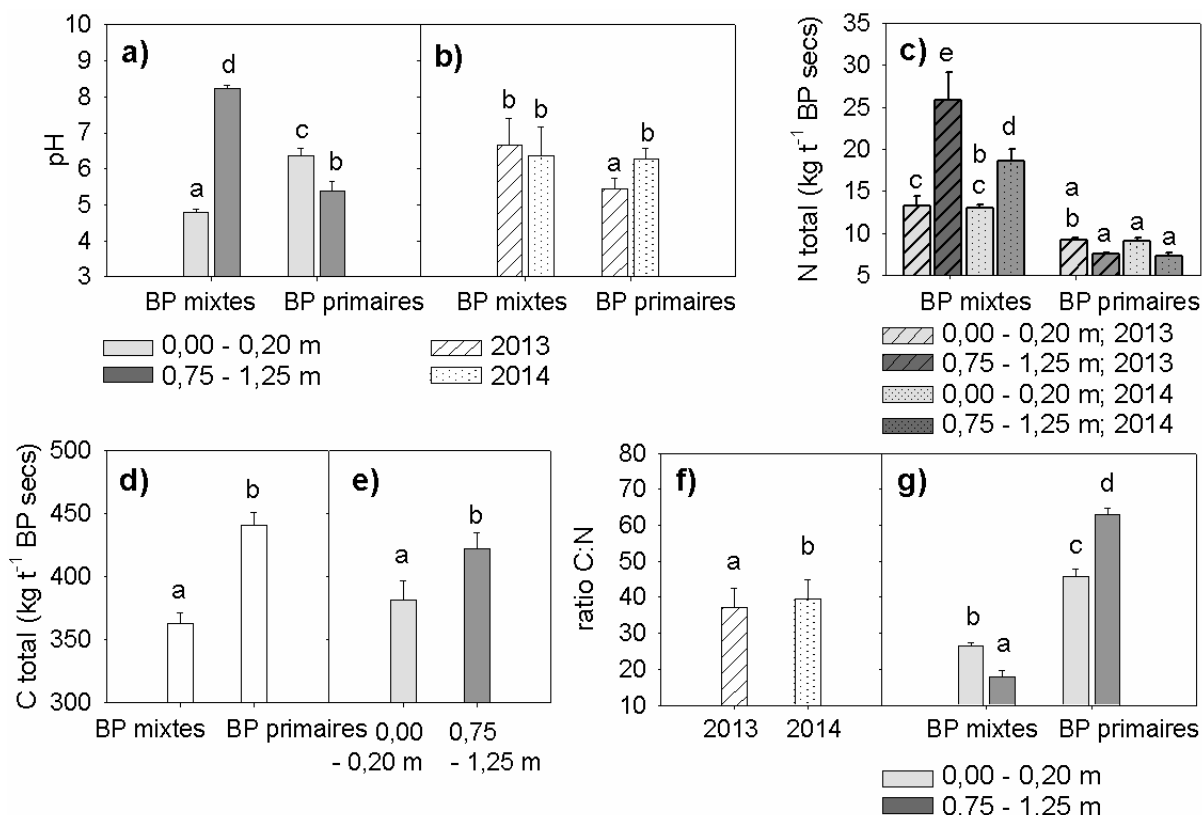


Figure 6 Moyennes des caractéristiques des biosolides papetiers (BP) dans les fosses d'enfouissement pilotes en fonction des facteurs significatifs, soit (a) l'évolution du pH en fonction du facteur croisé type de BP × profondeur ($n=6$; \pm erreur standard), (b) l'évolution du pH en fonction du facteur croisé type de BP × année ($n=6$; \pm erreur standard), (c) l'évolution de l'azote total en fonction du facteur croisé type de BP × profondeur × année ($n=3$; \pm erreur standard), (d) l'évolution du carbone total en fonction du type de BP ($n=12$; \pm erreur standard), (e) l'évolution du carbone total en fonction de la profondeur ($n=12$; \pm erreur standard), (f) l'évolution du ratio C:N en fonction de l'année ($n=12$; \pm erreur standard) et (g) l'évolution du ratio C:N en fonction du facteur croisé type de BP × profondeur ($n=6$; \pm erreur standard).

Les températures enregistrées au cours du premier mois d'enfouissement entre la surface et le 1^{er} mètre de profondeur dans les BP des deux fosses d'enfouissement pilotes suivies (AEFK4 et AEFA5, Figure 2) se maintenaient au-dessus de 30°C, et atteignaient jusqu'à 60°C à la surface de la fosse d'enfouissement pilote des BP mixtes (AEFK4) (Figure 7 a). Les températures maximales et moyennes les plus élevées de chacune des fosses d'enfouissement pilotes sont observés à 0,1 m de profondeur pour les deux périodes estivales de suivi (Tableau 8). Les températures moyennes enregistrées à 0,5 m de profondeur dans les BP mixtes de la fosse d'enfouissement pilote (AEFK4) étaient

inférieures aux moyennes mesurées à 0,1 m de 4,7 et 2,3°C sur les périodes de suivi estival de 2013 et 2014, respectivement, et supérieures aux moyennes mesurées à 1,0 m de 8,1 et 5,2°C sur les périodes de suivi estival de 2013 et 2014, respectivement. Les températures moyennes enregistrées à 0,5 m de profondeur dans la fosse d'enfouissement pilote les BP primaires (AEFA5) sont inférieures aux moyennes mesurées à 0,1 m de 5,6 et 5,4°C sur les périodes de suivi estival de 2013 et 2014 respectivement, et supérieures aux moyennes mesurées à 1,0 m de 0,9 et 1,0°C sur les périodes de suivi estival de 2013 et 2014, respectivement. Les températures moyennes enregistrées à 1,0 et 2,0 m de profondeur dans la fosse d'enfouissement pilote des BP mixtes (AEFK4) comparativement à celles dans la fosse d'enfouissement pilote des BP primaires (AEFA5) étaient supérieures de 0,8 et 0,3°C, respectivement, pour à la période de suivi 2013 et étaient inférieures de 1,6 et 0,3°C, respectivement, à la période de suivi 2014.

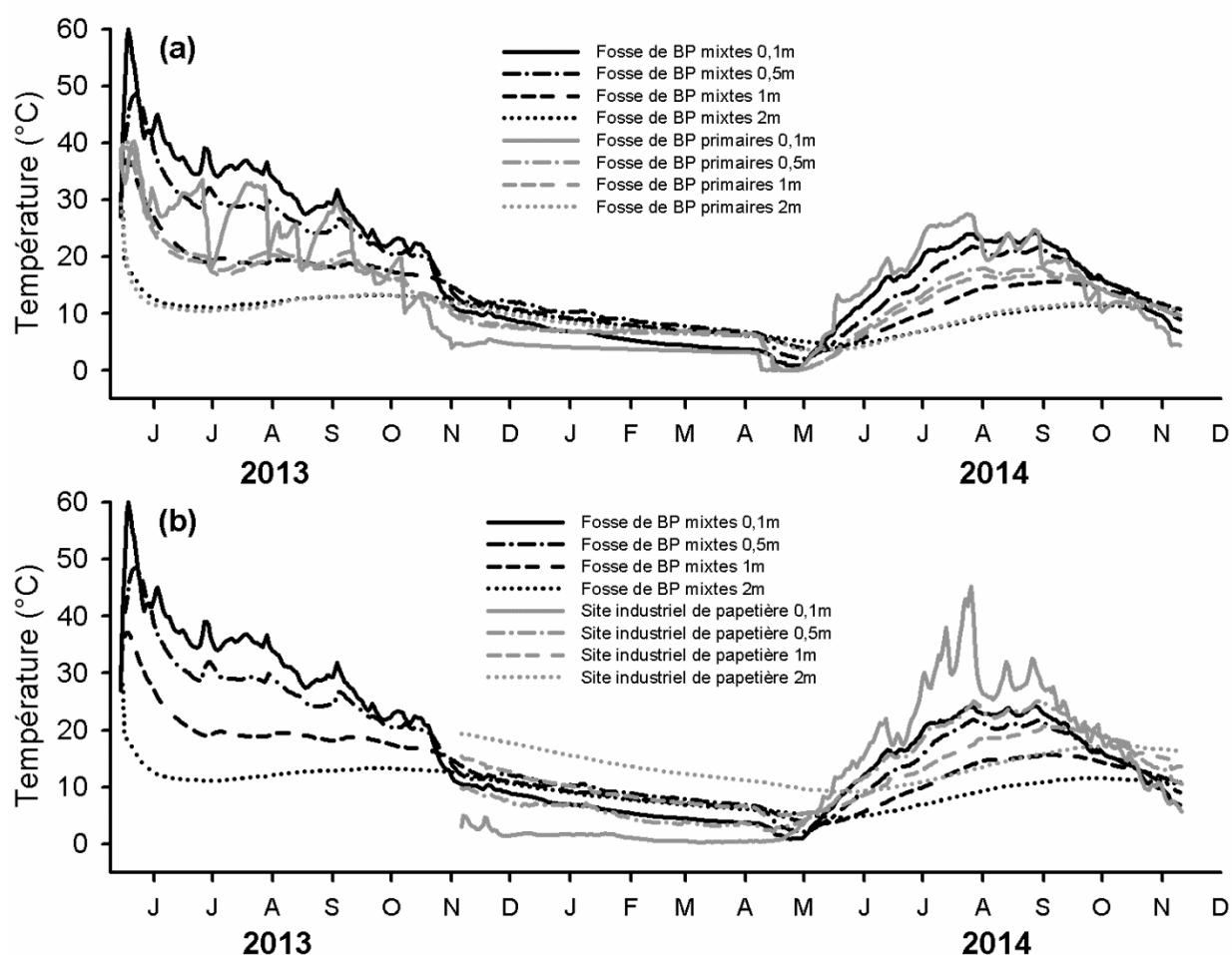


Figure 7 Températures mesurées à quatre profondeurs (0,1, 0,5, 1,0 et 2 m) dans les biosolides papetiers (BP) pour (a) la fosse d'enfouissement pilote de BP mixtes (AEFK4; $n=1$) et la fosse d'enfouissement pilote de BP primaires (AEFA5; $n=1$) et pour (b) la fosse d'enfouissement pilote contenant des BP mixtes (AEFK4; $n=1$) et le site d'enfouissement industriel de papetière ($n=1$).

Tableau 8 Températures journalières minimales, maximales et moyennes enregistrées du 1er juin au 1er octobre 2013 et du 1er juin au 1er octobre 2014 à quatre profondeurs (0,1 m, 0,5 m, 1,0 m, 2,0 m) pour les biosolides papetiers (BP) mixtes de la fosse d'enfouissement pilote AEFK4 (n=1) et pour les BP primaires de la fosse d'enfouissement pilote AEFA5 (n=1).

		1er juin au 1er octobre 2013			1er juin au 1er octobre 2014		
	Profondeur (m)	Température			Température		
		minimale (°C)	maximale (°C)	moyenne (°C)	minimale (°C)	maximale (°C)	moyenne (°C)
BP mixtes AEFK4	0,1	21,8	45,0	32,3	12,1	24,3	20,2
	0,5	20,4	39,1	27,6	9,1	21,8	17,9
	1,0	17,5	27,0	19,6	5,7	15,7	12,7
	2,0	11,1	13,3	12,2	4,9	11,5	8,9
BP primaires AEFA5	0,1	15,3	33,5	25,2	10,3	27,5	20,6
	0,5	16,1	24,9	19,7	7,5	18,2	15,2
	1,0	15,9	23,8	18,8	6,7	17,1	14,3
	2,0	10,5	13,4	11,9	4,4	11,9	9,2

Du 6 novembre 2013 au 6 novembre 2014, les températures journalières observées à 0,1 m de profondeur de la fosse d'enfouissement pilote des BP mixtes (AEFK4) étaient plus élevées (jusqu'à 7,9°C supérieures) que celles du site d'enfouissement industriel lors de la période hivernale (novembre 2013 à avril 2014), alors qu'elles étaient plus faibles (jusqu'à 21,2°C inférieures) en période estivale (mai 2014 à octobre 2014) (Figure 7 b). Les températures moyennes annuelles de la fosse d'enfouissement pilote de BP mixtes (AEFK4) étaient de 9,9 et 8,4°C à 1,0 et 2,0 m de profondeur, respectivement; elles étaient aussi inférieures à celles du site d'enfouissement industriel de 2,1 et 5,3°C à 1,0 et 2,0 m de profondeur, respectivement.

3.1.2. Bilan des émissions de GES de la gestion de biosolides papetiers par enfouissement

Les émissions cumulées de surface des BP mixtes se sont élevées à $2\,063 \pm 145$ kg N₂O ha⁻¹ et $9\,207 \pm 1\,561$ kg CH₄ ha⁻¹ au cours des deux saisons sans couvert nival, soit 889 et 21 fois plus élevées que celle des BP primaires, respectivement (Tableau 5). En contrepartie, les émissions cumulées de CO₂ ont été semblables entre les types de BP avec

299 325 \pm 2 476 et 352 611 \pm 43 067 kg CO₂ ha⁻¹ pour les BP mixtes et les BP primaires, respectivement.

Considérant que les émissions de surface ont été générées par les deux mètres d'épaisseur de BP des fosses, la gestion par enfouissement à l'échelle pilote a généré 0,22 \pm 0,02 et 0,004 \pm 0,001 t équivalent CO₂ (éq CO₂) t⁻¹ de BP secs pour les BP mixtes et pour les BP primaires respectivement (Tableau 9 a). Toutefois, le bilan des émissions de la gestion d'une tonne de BP par enfouissement à l'échelle pilote est très sensible selon la profondeur de BP enfouis à laquelle sont associées les émissions de surface (Tableau 9 a, b, c).

Tableau 9 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des émissions cumulées de la gestion par enfouissement à l'échelle pilote des biosolides papetiers (BP) mixtes et des BP primaires suivies sur deux ans considérant différentes profondeurs pour établir la masse de référence des émissions de surface, soit (a) 2 m de profondeur, (b) 1 m et (c) 0,5 m.

Types de BP	Émissions cumulées de gestion des BP de 2013-2014			Bilan GES ‡
	N ₂ O	CH ₄	CO ₂	
t éq CO ₂ t ⁻¹ BP secs ∅				
(a) Sur 2 m				
BP mixtes	0,152 ± 0,009	0,072 ± 0,013	0,083 ± 0,001	0,22 ± 0,02
BP primaires	0,00021 ± 0,00007	0,00403 ± 0,00096	0,116 ± 0,014	0,004 ± 0,001
(b) Sur 1 m				
BP mixtes	0,304 ± 0,018	0,144 ± 0,026	0,167 ± 0,002	0,45 ± 0,04
BP primaires	0,00041 ± 0,00014	0,00807 ± 0,00192	0,232 ± 0,027	0,008 ± 0,002
(c) Sur 0,5 m				
BP mixtes	0,609 ± 0,036	0,288 ± 0,052	0,334 ± 0,004	0,90 ± 0,09
BP primaires	0,00083 ± 0,00029	0,01613 ± 0,00384	0,465 ± 0,054	0,017 ± 0,004

∅ PRG de N₂O, CH₄ et CO₂ de 265, 28 et 1 respectivement (IPCC, 2013).

‡ Le bilan de GES inclut les émissions biogéniques et non biogéniques de N₂O et de CH₄ et les émissions non biogéniques de CO₂.

3.2. Résultats du dispositif d'épandage agricole

3.2.1. Variations saisonnières des émissions

Les émissions journalières de N_2O ont atteint leurs maximums de concentration au cours des six premières semaines après fertilisation pour les deux saisons de suivis (Figure 8 b). Les pics d'émissions de N_2O observés, six en début de saison et un en fin de saison, surviennent après des épisodes de pluie ayant haussé l'EPEE (Figure 8 a, b, h). À l'exception du pic automnal de 2013, les émissions journalières de N_2O subséquentes à la sixième semaine après épandage se sont maintenues à des concentrations inférieures à $0,3 \text{ mg N}_2\text{O-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$.

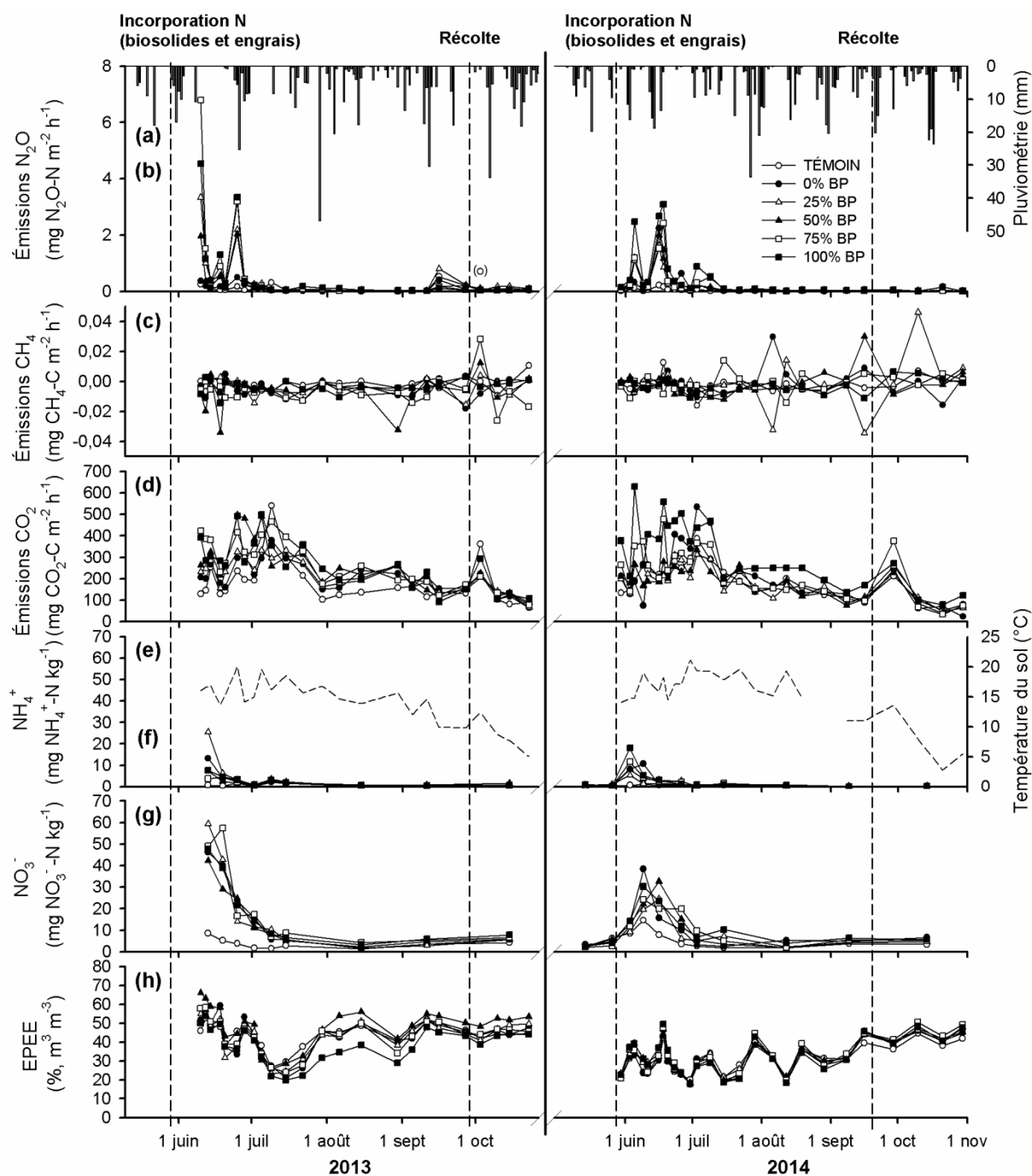


Figure 8 Évolution saisonnière des émissions de surface et des conditions environnementales du sol suite à la fertilisation agricole au cours des saisons 2013 et 2014, soit (a) la pluviométrie ($n=1$), (b) les émissions (moyenne; $n=3$) de N_2O , (c) de CH_4 et (d) de CO_2 , (e) la température du sol (moyenne; $n=18$), (f) des concentrations (moyenne; $n=3$) de NH_4^+-N , (g) des concentrations (moyenne; $n=3$) de NO_3^--N et (h) l'espace des pores emplis d'eau (EPEE; moyenne; $n=3$) calculé avec les contenus volumétriques en eau mesurés à l'humidimètre portatif à une profondeur de 0,20 m (2013) et à 0,12 m (2014). Les traitements de fertilisation 0% BP, 25% BP, 50% BP, 75% BP, 100% BP équivalent au pourcentage des apports en azote disponible pour la culture par les biosolides papetiers (BP), la balance étant fournie par l'engrais minéral.

À quelques reprises au cours de la saison 2013, une des parcelles témoins présentait des émissions de N_2O anormalement élevées par rapport aux autres unités expérimentales du même traitement et des unités des autres traitements. Son émission journalière du 3 octobre 2013 avait une valeur exceptionnellement élevée, à l'opposé de toutes les autres mesures de cette journée, soit 28 fois supérieures. Parmi les mesures de conditions environnementales (concentration de NO_3^- des sols, EPEE, émissions de CO_2), seules les émissions de CO_2 étaient anormalement élevées (3,4 fois la moyenne journalière). Cette donnée a été rejetée à cause de son impact démesuré sur les calculs des émissions cumulées de N_2O et des FEIF- N_2O .

Les émissions de N_2O extrapolées pour les deux premières semaines de 2013 où il n'y a pas eu d'échantillonnage des GES représentent en moyenne par unité expérimentale (tous traitements confondus) 19,2% des émissions cumulées de la saison, une proportion identique aux émissions mesurées des deux premières semaines de 2014 équivalant à 19,2% de celles de la saison complète. Les poids relatifs des émissions non mesurées de CH_4 et de CO_2 des deux premières semaines de la saison 2013 ont été estimés à 0,014% et 10,47% par rapport au reste de la saison, respectivement.

De très faibles émissions et suppressions journalières de CH_4 ont été observées au cours des deux saisons (Figure 8, c). L'émission et la suppression journalières maximales observées par traitement sont de $0,061 \pm 0,032$ et $-0,046 \pm 0,051 \text{ mg CH}_4\text{-C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, respectivement.

Les émissions de CO_2 les plus importantes ont été observées au cours des huit premières semaines après épandage (Figure 8, d). Les émissions se sont ensuite maintenues à un niveau plus faible le reste de la saison estivale. Des hausses ponctuelles d'émissions de CO_2 ont aussi été observées 6 et 13 jours après les récoltes du blé pour les saisons 2013 et 2014, respectivement.

Les concentrations d'azote minéral dans le sol ont rapidement augmenté après l'application des traitements de fertilisation azotée (Figure 8 f, g). Les pics de concentrations maximales de NH_4^+ observés en 2014 se sont produits 6 jours après épandage (3 juin 2014); ceux de la saison 2013 n'ont pas été observés étant donné l'absence de mesures lors des deux

premières semaines après traitement. Des pics de concentrations de NO_3^- pour les saisons 2013 et 2014 ont été observés les 16^e et 20^e jours, ainsi que les 12^e et 19^e jours après épandage, respectivement. Les concentrations maximales de NO_3^- pour les traitements avec fertilisation azotée en 2013 étaient de 1,5 à 3 fois supérieures à celles observées en 2014.

En 2013, les EPEE, mesurés avec l'humidimètre portatif sur 0,20 m de profondeur, ont varié entre 30 et 65 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ durant les quatre premières semaines de suivi après épandage (Figure 8, h); ils ont diminué jusqu'à 20 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ à la mi-juillet et se sont maintenus entre 40 et 55 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ en fin de saison. En 2014, les EPEE, mesurés avec l'humidimètre portatif sur 0,12 m de profondeur, ont varié entre 20 et 50 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ lors des six premières semaines après épandage, de même que lors de la période estivale, puis se sont maintenus en entre 40 et 55 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ en fin de saison.

3.2.2. Facteurs contrôlant les émissions

Les concentrations en matière organique du sol entre les unités expérimentales de la saison 2014 ne variaient pas significativement avant et après l'épandage de BP pour aucun des traitements ($P=0,6643$), bien qu'elles aient tendu à se différencier entre les traitements ($P=0,0529$) ainsi qu'entre avant et après l'application des BP ($P=0,0660$) (Tableau 10). Le contraste d'augmentation linéaire de la dose de BP épandus sur l'interaction des facteurs traitements et période n'a pas généré de tendance significative sur les concentrations de matière organique du sol ($P=0,4181$).

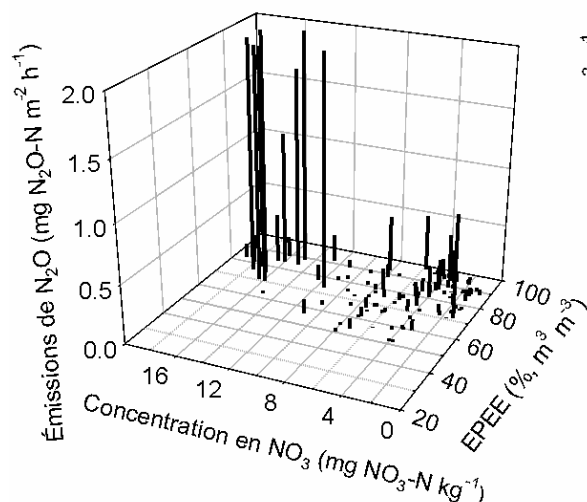
Tableau 10 Matière organique du sol des unités expérimentales du dispositif d'épandage agricole de la saison 2014 avant et après l'application des traitements de fertilisation organique et minérale (moyenne \pm erreur standard; $n=3$).

Traitement ‡	Matière organique dans le sol avant application du traitement	Matière organique dans le sol après application du traitement
	%	%
Témoin	$4,7 \pm 0,5$	$5,3 \pm 0,5$
0% BP	$5,6 \pm 0,5$	$5,5 \pm 0,6$
25% BP	$4,2 \pm 0,4$	$4,2 \pm 0,4$
50% BP	$4,8 \pm 0,2$	$5,1 \pm 0,2$
75% BP	$4,0 \pm 0,7$	$5,0 \pm 0,4$
100% BP	$4,6 \pm 0,5$	$5,7 \pm 0,2$

‡ 0% BP; 25% BP, 50% BP; 75% BP, 100% BP; pourcentage des apports en azote disponible pour la culture par les biosolides papetiers (BP), la balance étant fournie par l'engrais minéral.

Les concentrations minimales de NO_3^- nécessaires observées pour générer des émissions de N_2O supérieures à $0,5 \text{ mg N}_2\text{O-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ étaient de 1,2 et $2,6 \text{ mg NO}_3^- \text{-N kg}^{-1}$ de sol pour la saison 2013 et 2014 respectivement (Figure 9). Les EPEE nécessaires (calculés à partir du contenu gravimétrique en eau des échantillons de sols mesurés en laboratoire) pour générer des émissions de N_2O supérieures à $0,5 \text{ mg N}_2\text{O-N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ ont différé entre les saisons variant entre 70 et $90 \text{ \% m}^3 \text{ m}^{-3}$ pour la saison 2013, et variant entre 40 et $70 \text{ \% m}^3 \text{ m}^{-3}$ pour la saison 2014.

a) Saison 2013



b) Saison 2014

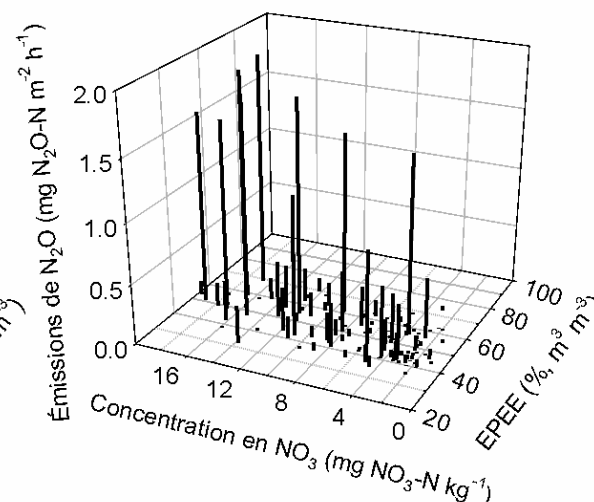


Figure 9 Émissions journalières de N_2O en fonction de la concentration en NO_3^- dans les sols en surface (0,0 – 0,2 m) et de l'espace des pores remplis d'eau (EPEE) en surface (0,0 – 0,20 m) calculé avec le contenu gravimétrique en eau des échantillons de sol après l'application de traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers, combiné ou non avec un engrais minéral, pour (a) la saison 2013 et (b) 2014.

Les EPEE moyens (calculés à partir du contenu gravimétrique en eau des échantillons de sols mesurés en laboratoire) n'influençaient pas les émissions cumulées de N_2O (Figure 10 a), mais étaient significativement distincts entre les années ($P_{(1,4)}=0,0001^*$). Les émissions cumulées de CO_2 se sont avérées un facteur contrôlant significativement les émissions cumulées de N_2O pour les deux saisons ($P_{2013}=0,0680^*$; $P_{2014}=0,0088^*$), davantage important pour la saison 2014 ($r^2_{ajusté2013}=0,14$; $r^2_{ajusté2014}=0,32$) (Figure 10 b). L'exposition aux nitrates a été un facteur de contrôle significatif et prépondérant sur la production de N_2O en 2014 ($r^2_{ajusté}=0,61$; $P=0,0001^*$), contrairement à la saison 2013 ($P=0,1388$) (Figure 10 c). L'augmentation du CUA des traitements de fertilisation a réduit significativement les émissions au rendement de blé en 2013 seulement ($P_{2013}=0,0042^*$; $P_{2014}=0,1971$) (Figure 10 d).

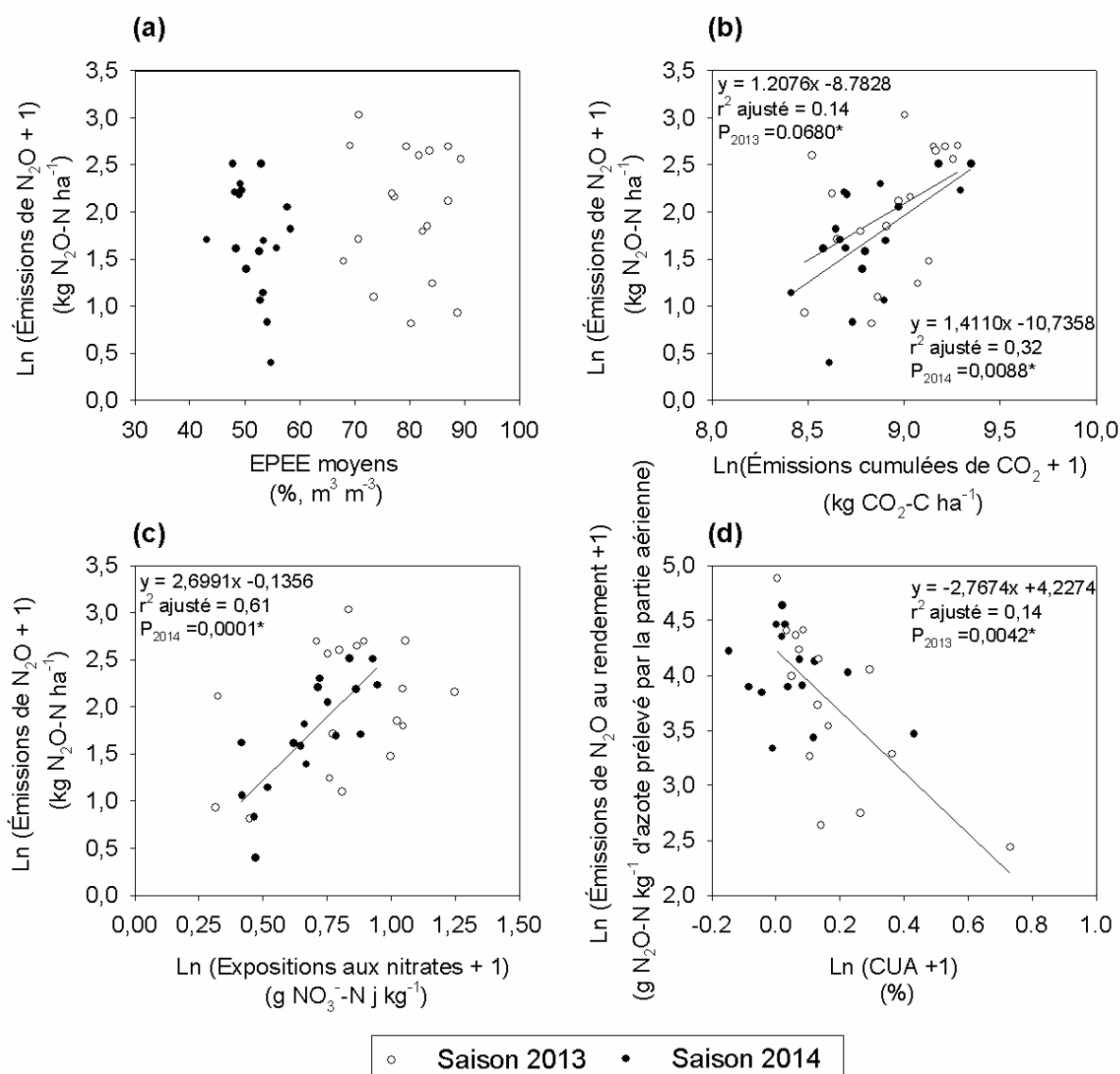


Figure 10 Relations significative (valeur de significativité de $\alpha=0,10$) entre (a) les émissions cumulées de N_2O et l'espace des pores remplis d'eau (EPEE) moyens mesurés avec le contenu gravimétrique des échantillons de sol mesurés en laboratoire, (b) les émissions cumulées de N_2O et les émissions cumulées de CO_2 , (c) les émissions cumulées de N_2O et l'exposition aux nitrates, (d) ainsi qu'entre les émissions au rendement et le coefficient d'utilisation de l'azote (CUA), après l'application de traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers, combiné ou non avec un engrais minéral, pour la saison 2013 et 2014.

3.2.3. Coefficients d'émissions agronomiques saisonniers, effets des traitements et rendements de la culture

Les émissions saisonnières cumulées de N_2O par surface des traitements avec fertilisation azotée ont varié dans une fourchette de $3,2 \pm 0,9$ à $13,5 \pm 3,5$ $\text{kg N}_2\text{O-N ha}^{-1}$ (Tableau 11), leur FEIF- N_2O ont varié entre $-0,2 \pm 2,4$ et $3,9 \pm 0,3$ % et les émissions de N_2O au rendement ont varié de $21,8 \pm 6,2$ à $115,5 \pm 23,2$ $\text{g N}_2\text{O-N kg}^{-1}$ N de grains, toutes saisons confondues.

Tableau 11 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des émissions cumulées de N₂O de surface, du facteur d'émissions de N₂O induites par le fertilisant et des émissions cumulées au rendement après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons.

Traitements ‡	2013				2014			Moyenne des 2 ans		
	Émissions§ par surface	Émissions† par surface	FEIF†	Émissions† au rendement	Émissions par surface	FEIF	Émissions au rendement	Émissions par surface	FEIF	Émissions au rendement
	kg N ₂ O-N ha ⁻¹	kg N ₂ O-N ha ⁻¹	% N ₂ O-N	g N ₂ O-N kg ⁻¹ N de grain	kg N ₂ O-N ha ⁻¹	% N ₂ O-N	g N ₂ O-N kg ⁻¹ N de grain	kg N ₂ O-N ha ⁻¹	% N ₂ O-N	g N ₂ O-N kg ⁻¹ N de grain
Témoin	3,2 \pm 1,8	3,3 \pm 2,0		32,2 \pm 18,1	1,2 \pm 0,4		16,8 \pm 5,2	2,3 \pm 1,0		24,5 \pm 9,1
0% BP	2,9 \pm 0,9	3,2 \pm 0,9	-0,2 \pm 2,4	21,8 \pm 6,2	5,4 \pm 0,7	3,9 \pm 0,3	59,9 \pm 9,6	4,3 \pm 0,7	1,8 \pm 1,4	40,8 \pm 9,9
25% BP	8,1 \pm 2,1	10,5 \pm 2,6	3,0 \pm 1,1	75,7 \pm 17,3	4,1 \pm 0,2	1,1 \pm 0,2	75,2 \pm 6,6	7,3 \pm 1,8	2,0 \pm 0,6	75,5 \pm 8,3
50% BP	5,2 \pm 1,9	6,6 \pm 2,7	0,9 \pm 1,0	48,9 \pm 23,0	5,0 \pm 1,5	0,9 \pm 0,4	62,0 \pm 12,5	5,8 \pm 1,4	0,9 \pm 0,5	55,5 \pm 12,1
75% BP	8,6 \pm 1,5	13,5 \pm 3,5	2,0 \pm 0,8	103,5 \pm 33,8	6,2 \pm 2,0	0,9 \pm 0,3	86,1 \pm 25,2	9,8 \pm 2,4	1,4 \pm 0,4	94,8 \pm 19,2
100% BP	8,6 \pm 1,4	11,9 \pm 2,0	1,3 \pm 0,3	95,9 \pm 9,8	10,5 \pm 0,8	1,3 \pm 0,1	115,5 \pm 23,2	11,2 \pm 1,0	1,3 \pm 0,1	105,7 \pm 12,1
Facteurs et contrastes †	Valeurs de P ¶									
Traitement		0,0048*	0,2542	0,0111*	0,0014*	0,0005*	0,0003*	<,0001*	0,5376	<,0001*
Témoin vs Fertilisation		0,0047*	-	0,0265*	0,0001*	-	<,0001*	<,0001*	-	<,0001*
Min vs BP		0,0367*	0,5583	0,0166*	0,0130*	0,0137*	0,1508	0,0018*	0,7088	0,0033*
Substitution linéaire		0,0003*	0,4789	<,0001*	0,0462*	0,0006*	0,0446*	<,0001*	0,3432	<,0001*
Substitution quadratique		0,0746	0,2356	0,1015	0,0484*	0,0004*	0,2988	0,4782	0,5993	0,7536
Substitution cubique		0,1353	0,2707	0,0607	0,8214	0,0667	0,3164	0,2687	0,6396	0,0418*
An		-	-	-	-	-	-	0,2658	0,8143	0,6040
Traitement \times An		-	-	-	-	-	-	0,0455*	0,0060*	0,0826
Témoin vs Fertilisation		-	-	-	-	-	-	0,4936	-	0,2029
Min vs BP		-	-	-	-	-	-	0,0752	0,1494	0,0644
Substitution linéaire		-	-	-	-	-	-	0,1357	0,0295*	0,0135*
Substitution quadratique		-	-	-	-	-	-	0,0071*	0,0089*	0,0589
Substitution cubique		-	-	-	-	-	-	0,4559	0,0948	0,5812

§ Émissions de N₂O mesurées en 2013 ; † Émissions de N₂O corrigées et estimées pour les deux premières semaines après application des traitements

‡ 0% BP; 25% BP; 50% BP; 75% BP; 100% BP, pourcentage des apports en azote disponible pour la culture fournis par les biosolides papetiers, la balance étant fournie par l'engrais minéral.

¶ Min, engrais minéral (0% BP); BP, biosolides papetiers (100% BP); Substitution linéaire, quadratique et cubique, substitution de l'engrais minéral par les biosolides papetiers (0% BP, 25% BP, 50% BP, 75% BP, 100% BP).

¶ Les valeurs de P des contrastes significatifs retenus pour les analyses sont en gras; les contrastes significatifs sur les facteurs croisés priment les facteurs simples, puis le contraste orthogonal polynomiale cubique prime sur le quadratique et le quadratique prime sur le linéaire.

La fertilisation azotée comparativement au traitement témoin a généré davantage d'émissions de N_2O par surface, lors des deux saisons considérées individuellement et globalement (Tableau 11). De plus, l'épandage de BP comparativement à l'engrais minéral a systématiquement généré davantage d'émissions de N_2O par surface, alors que les émissions de la substitution de l'engrais minéral par des BP évoluaient différemment entre les saisons : augmentant selon une tendance linéaire en 2013, variant de manière quadratique en 2014 et variant globalement de manière quadratique différente entre les saisons (c.-à-d. contraste quadratique significatif pour l'interaction traitement \times an).

La fertilisation azotée comparativement au traitement témoin a généré davantage d'émissions de N_2O au rendement, lors des deux saisons considérées individuellement et globalement (Tableau 11). L'épandage de BP a aussi généré des émissions de N_2O au rendement globalement supérieures à celles de l'engrais minéral, bien que celles-ci soient semblables en 2014. La substitution de l'engrais minéral par les BP a généré une augmentation linéaire des émissions de N_2O au rendement pour les deux saisons de suivi, mais cette relation linéaire varie différemment entre les saisons (c.-à-d. contraste quadratique significatif pour l'interaction traitement \times an).

Les BP (c.-à-d. traitement 100% BP) ont un FEIF- N_2O globalement semblable à celui de l'engrais minéral (c.-à-d. traitement 0% BP), bien que celui de l'engrais minéral ait été supérieur en 2014 (Tableau 11). La substitution de l'engrais minéral par les BP a généré une relation quadratique sur le FEIF- N_2O variant différemment entre les saisons (c.-à-d. contraste quadratique significatif pour l'interaction traitement \times an).

Les émissions saisonnières cumulées de CH_4 par surface variaient entre les faibles suppressions de $-0,23 \pm 0,19$ et $-0,01 \pm 0,11$ kg $\text{CH}_4\text{-C ha}^{-1}$ et n'ont pas été influencées significativement par les traitements de fertilisation, incluant le témoin ($P_{(5,20)}=0,9961$; Données non présentées). La saison 2013 a toutefois généré une suppression de CH_4 légèrement supérieure par rapport à 2014 (2013 : $-0,20 \pm 0,09$ kg $\text{CH}_4\text{-C ha}^{-1}$; 2014 : $-0,08 \pm 0,15$ kg $\text{CH}_4\text{-C ha}^{-1}$; $P_{(5,20)}=0,0113^*$).

Les émissions cumulées de CO₂ variaient entre les traitements, incluant le témoin, dans une fourchette de $6,0 \pm 0,3$ et $9,5 \pm 1,3$ kg CO₂-C ha⁻¹, toutes saisons confondues (Tableau 12). Les émissions cumulées de CO₂ n'ont pas été influencées significativement par la nature des fertilisants, par leur substitution, ni par les conditions saisonnières des deux années de suivi. Toutefois, considérant les émissions cumulées de CO₂ des six premières semaines de suivi après épandage, la fertilisation a généré des émissions supérieures au témoin et la substitution de l'engrais minéral par les BP a généré une relation quadratique en 2014 et une relation quadratique variant différemment entre les saisons (c.-à-d. contraste quadratique significatif pour l'interaction traitement \times an). De plus, les émissions cumulées de CO₂ des six premières semaines de suivi après épandage en 2014 sont supérieures à celles de 2013.

Tableau 12 Moyennes ($n=3$; \pm erreur standard) des émissions cumulées de CO_2 de surface pour les six premières semaines, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral.

Traitements ‡	2013		2014		Moyenne des 2 ans	
	Émissions† de surface 6 ^{ème} semaines	Émissions† de surface (totales)	Émissions de surface 6 ^{ème} semaines	Émissions de surface (totales)	Émissions de surface 6 ^{ème} semaines	Émissions de surface (totales)
	t $\text{CO}_2\text{-C ha}^{-1}$	t $\text{CO}_2\text{-C ha}^{-1}$	t $\text{CO}_2\text{-C ha}^{-1}$	t $\text{CO}_2\text{-C ha}^{-1}$	t $\text{CO}_2\text{-C ha}^{-1}$	t $\text{CO}_2\text{-C ha}^{-1}$
Témoin	2,1 \pm 0,1	6,5 \pm 0,9	2,4 \pm 0,2	6,3 \pm 0,5	2,2 \pm 0,1	6,4 \pm 0,5
0% BP	2,3 \pm 0,3	7,4 \pm 0,7	2,8 \pm 0,2	7,0 \pm 0,7	2,6 \pm 0,2	7,2 \pm 0,4
25% BP	2,5 \pm 0,4	7,5 \pm 1,4	2,2 \pm 0,1	6,1 \pm 0,2	2,4 \pm 0,2	6,8 \pm 0,7
50% BP	3,4 \pm 0,6	8,5 \pm 1,4	2,2 \pm 0,2	6,0 \pm 0,3	2,8 \pm 0,4	7,2 \pm 0,9
75% BP	3,2 \pm 0,2	8,7 \pm 0,4	2,9 \pm 0,8	7,1 \pm 1,9	3,1 \pm 0,4	7,9 \pm 1,0
100% BP	3,3 \pm 0,5	8,6 \pm 1,5	4,1 \pm 0,6	9,5 \pm 1,3	3,7 \pm 0,4	9,0 \pm 0,9
Facteurs et contrastes ‡	Valeurs de P ⊕					
Traitements	0,1882	0,8040	0,0362*	0,2088	0,0219*	0,3500
Témoin vs Fertilisation	0,0831	0,2730	0,3398	0,5201	0,0454*	0,1985
Min vs BP	0,3497	0,7152	0,2313	0,3057	0,1175	0,3087
Substitution linéaire	0,0892	0,4435	0,0519	0,1508	0,0098*	0,1239
Substitution quadratique	0,4785	0,8403	0,0134*	0,0667	0,1873	0,2603
Substitution cubique	0,6316	0,6419	0,9546	0,7508	0,6748	0,8668
An	-	-	-	-	0,0454*	0,1979
Traitements*An	-	-	-	-	0,1709	0,6864
Témoin vs Fertilisation	-	-	-	-	0,1598	0,1804
Min vs BP	-	-	-	-	0,9587	0,6440
Substitution linéaire	-	-	-	-	0,9200	0,7179
Substitution quadratique	-	-	-	-	0,0217*	0,1552
Substitution cubique	-	-	-	-	0,7276	0,5683

† Émissions estimées pour les deux premières semaines après application des traitements

‡ 0% BP; 25% BP, 50% BP; 75% BP, 100% BP, pourcentage des apports en azote disponible pour la culture fournis par les biosolides papetiers, la balance étant fournie par l'engrais minéral.

§ Min, engrais minéral (0% BP); BP, biosolides papetiers (100% BP); Substitution linéaire, quadratique et cubique, substitution de l'engrais minéral par les biosolides papetiers (0% BP, 25% BP, 50% BP, 75% BP, 100% BP).

⊕ Les valeurs de P des contrastes significatifs retenus pour les analyses sont en gras; les contrastes significatifs sur les facteurs croisés priment les facteurs simples, puis le contraste orthogonal polynomiale cubique prime sur le quadratique et le quadratique prime sur le linéaire.

Les prélèvements en azote par la partie aérienne du blé ont varié entre les traitements, incluant le témoin, dans une fourchette de 80 ± 10 et 196 ± 18 kg N ha⁻¹, toutes saisons confondues (Tableau 13). Ils ont été supérieurs pour la saison 2013 comparativement à la saison 2014. Ils ont aussi été supérieurs pour les traitements de fertilisation comparativement au témoin en 2013, mais semblable en 2014. Les rendements de grain de blé pour tous les traitements, incluant le témoin, ont aussi été significativement supérieurs en 2013, variant entre $4,0 \pm 0,6$ et $5,5 \pm 0,5$ t de grain ha⁻¹, comparativement à saison de 2014 variant entre $2,5 \pm 0,3$ et $3,8 \pm 0,8$ t de grain ha⁻¹.

Tableau 13 Moyennes ($n=3$; \pm erreur standard) des prélèvements en azote pour la partie aérienne du blé et des rendements de grain après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons.

Traitements ‡	2013		2014		Moyenne des 2 ans	
	Prélèvement N aérien	Rendement en grain	Prélèvement N aérien	Rendement en grain	Prélèvement N aérien	Rendement en grain
	kg N ha ⁻¹	t de MS ha ⁻¹	kg N ha ⁻¹	t de MS ha ⁻¹	kg N ha ⁻¹	t de MS ha ⁻¹
Témoin	134 \pm 9	4,0 \pm 0,6	91 \pm 4	3,1 \pm 0,1	113 \pm 10	3,5 \pm 0,3
0% BP	195 \pm 23	5,3 \pm 0,5	124 \pm 11¢	3,7 \pm 0,3	159 \pm 20	4,5 \pm 0,4¢
25% BP	183 \pm 19	5,0 \pm 0,6	80 \pm 10¢	2,5 \pm 0,3	131 \pm 25	3,8 \pm 0,6¢
50% BP	196 \pm 18	5,5 \pm 0,5	108 \pm 23¢	3,4 \pm 0,6	152 \pm 23	4,4 \pm 0,6¢
75% BP	183 \pm 18	4,7 \pm 0,3	94 \pm 8	2,7 \pm 0,2	138 \pm 22	3,7 \pm 0,5
100% BP	166 \pm 9	4,2 \pm 0,4	133 \pm 26	3,8 \pm 0,8	150 \pm 14	4,0 \pm 0,4
Facteurs et contrastes ‡	Valeurs de P ⊕					
Traitements	0,1555	0,3698	0,2955¢	0,3778	0,1494	0,3235 ¢
Témoin vs Fertilisation	0,0148*	0,1526	0,4957¢	0,7474	0,0444*	0,1826 ¢
Min vs BP	0,4868	0,3211	0,8379¢	0,9401	0,7355	0,4135 ¢
Substitution linéaire	0,3749	0,1668	0,6380¢	0,8454	0,9655	0,3550 ¢
Substitution quadratique	0,6093	0,4339	0,1055¢	0,1641	0,2063	0,6422 ¢
Substitution cubique	0,6644	0,7918	0,6065¢	0,8454	0,5006	0,7411 ¢
An	-	-	-	-	<,0001*	0,0003*¢
Traitements*An	-	-	-	-	0,2836	0,3620 ¢
Témoin vs Fertilisation	-	-	-	-	<,0001*	<,0001*¢
Min vs BP	-	-	-	-	0,5117	0,3630 ¢
Substitution linéaire	-	-	-	-	0,3857	0,2355 ¢
Substitution quadratique	-	-	-	-	0,0833	0,1169 ¢
Substitution cubique	-	-	-	-	0,8129	0,9560 ¢

¢ Données de pailles manquantes estimées

‡ 0% BP; 25% BP, 50% BP; 75% BP, 100% BP, pourcentage des apports en azote disponible pour la culture fournis par les biosolides papetiers, la balance étant fournie par l'engrais minéral.

‡ Min, engrais minéral (0% BP); BP, biosolides papetiers (100% BP); Substitution linéaire, quadratique et cubique, substitution de l'engrais minéral par les biosolides papetiers (0% BP, 25% BP, 50% BP, 75% BP, 100% BP).

⊕ Les valeurs de P des contrastes significatifs retenus pour les analyses sont en gras; les contrastes significatifs sur les facteurs croisés priment les facteurs simples, puis le contraste orthogonal polynomiale cubique prime sur le quadratique et le quadratique prime sur le linéaire.

Les expositions aux nitrates des traitements avec fertilisation azotée ont varié entre $0,95 \pm 0,26$ et $1,72 \pm 0,38$ g $\text{NO}_3^- \text{-N j kg}^{-1}$, toutes saisons confondues, et ceux des témoins étaient de $0,44 \pm 0,06$ et $0,57 \pm 0,03$ g $\text{NO}_3^- \text{-N j kg}^{-1}$ (Tableau 14). Les expositions aux nitrates des traitements de fertilisations étaient significativement supérieures à celles du témoin pour les deux saisons de suivi; elles étaient aussi davantage supérieures à celles du témoin en 2013 qu'en 2014 (c.-à-d. contraste témoin vs fertilisation significatif pour l'interaction traitement \times an.)

Tableau 14 Moyennes (n=3; \pm erreur standard) des exposition aux nitrates, coefficient d'utilisation de l'azote (CUA) et excédents en azote dans le sol après l'application des traitements de fertilisation avec épandage de biosolides papetiers (BP), combiné ou non avec un engrais minéral, pour les saisons 2013 et 2014 et pour la moyenne des deux saisons.

Traitements ‡	2013			2014			Moyenne des 2 ans		
	Exposition aux nitrates	CUA	Excédents en azote	Exposition aux nitrates	CUA	Excédents en azote	Exposition aux nitrates	CUA	Excédents en azote
	g NO ₃ ⁻ -N j kg ⁻¹	%	kg N ha ⁻¹	g NO ₃ ⁻ -N j kg ⁻¹	%	kg N ha ⁻¹	g NO ₃ ⁻ -N j kg ⁻¹	%	kg N ha ⁻¹
Témoin	0,44 \pm 0,06	-	-134 \pm 9	0,57 \pm 0,03	-	-91 \pm 4	0,51 \pm 0,04	-	-113 \pm 10
0% BP	1,41 \pm 0,22	56 \pm 27	-85 \pm 23	1,09 \pm 0,08	29 \pm 13 ϕ	-14 \pm 11 ϕ	1,25 \pm 0,13	42 \pm 15 ϕ	-50 \pm 20 ϕ
25% BP	1,48 \pm 0,16	20 \pm 7	59 \pm 19	0,95 \pm 0,26	-5 \pm 5 ϕ	175 \pm 10 ϕ	1,22 \pm 0,18	8 \pm 7 ϕ	117 \pm 28 ϕ
50% BP	1,33 \pm 0,19	16 \pm 7	181 \pm 18	1,06 \pm 0,16	4 \pm 6 ϕ	293 \pm 23 ϕ	1,20 \pm 0,13	10 \pm 5 ϕ	237 \pm 28 ϕ
75% BP	1,72 \pm 0,38	10 \pm 5	327 \pm 18	1,10 \pm 0,26	0 \pm 1	452 \pm 8	1,41 \pm 0,25	5 \pm 3	389 \pm 29
100% BP	1,58 \pm 0,28	5 \pm 1	476 \pm 9	1,30 \pm 0,14	6 \pm 3	558 \pm 26	1,44 \pm 0,15	6 \pm 2	517 \pm 22
Facteurs et contrastes †	Valeurs de P \ni								
Traitements	0,0036*	0,0926	<,0001*	0,1312	0,0481* ϕ	<,0001* ϕ	0,0002*	0,0049*	<,0001* ϕ
Témoin vs Fertilisation	0,0001*	-	<,0001*	0,0138*	-	<,0001* ϕ	<,0001*	-	<,0001* ϕ
Min vs BP	0,7795	0,1738	0,0032*	0,4208	0,2201 ϕ	0,0026*ϕ	0,5122	0,0547	<,0001* ϕ
Substitution linéaire	0,5007	0,0143*	<,0001*	0,3936	0,1108 ϕ	<,0001* ϕ	0,2721	0,0025*	<,0001* ϕ
Substitution quadratique	0,9014	0,2855	0,6312	0,3975	0,0257*ϕ	0,1169 ϕ	0,4776	0,0240*	0,3785 ϕ
Substitution cubique	0,7622	0,5113	0,6520	0,8459	0,1370 ϕ	0,7669 ϕ	0,7216	0,1522	0,5920 ϕ
An	-	-	-	-	-	-	0,1021	0,1080	<,0001*
Traitements*An	-	-	-	-	-	-	0,3734	0,5440	0,1868 ϕ
Témoin vs Fertilisation	-	-	-	-	-	-	0,0136*	-	<,0001* ϕ
Min vs BP	-	-	-	-	-	-	0,8951	0,4448	0,8195 ϕ
Substitution linéaire	-	-	-	-	-	-	0,8835	0,1403	0,7182 ϕ
Substitution quadratique	-	-	-	-	-	-	0,5913	0,5522	0,1282 ϕ
Substitution cubique	-	-	-	-	-	-	0,9402	0,7152	0,9147 ϕ

ϕ Données de pailles manquantes estimées

‡ 0% BP; 25% BP; 50% BP; 75% BP; 100% BP, pourcentage des apports en azote disponible pour la culture fournis par les biosolides papetiers, la balance étant fournie par l'engrais minéral.

† Min, engrais minéral (0% BP); BP, biosolides papetiers (100% BP); Substitution linéaire, quadratique et cubique, substitution de l'engrais minéral par les biosolides papetiers (0% BP, 25% BP, 50% BP, 75% BP, 100% BP).

\ni Les valeurs de P des contrastes significatifs retenus pour les analyses sont en gras; les contrastes significatifs sur les facteurs croisés priment les facteurs simples, puis le contraste orthogonal polynomiale cubique prime sur le quadratique et le quadratique prime sur le linéaire.

Le CUA des traitements de fertilisation a varié entre -5 ± 5 et 56 ± 27 %, toutes saisons confondues (Tableau 14). Le CUA de la substitution de l'engrais minéral par les BP a diminué linéairement en 2013, a évolué de manière quadratique en 2014 et a globalement évolué de manière quadratique pour les deux saisons.

Les excédents en azote pour tous les traitements, incluant le témoin, ont varié entre -134 ± 9 et 558 ± 26 kg N ha⁻¹, toutes saisons confondues (Tableau 14). Ils étaient supérieurs pour les traitements de fertilisation comparativement au témoin pour chacune des saisons individuellement; globalement en 2013, les excédents en azote du témoin étaient davantage inférieurs à ceux de la fertilisation azotée comparativement à 2014 (c.-à-d. contraste témoin vs fertilisation significatif pour l'interaction traitement \times an). Les excédents en azote étaient aussi supérieurs pour les BP comparativement à l'engrais minéral et augmentaient linéairement avec la substitution de l'engrais minéral par les BP, pour les deux saisons de suivi, ainsi que globalement pour les deux saisons. Les excédents en azote tous traitements confondus étaient supérieurs en 2014 comparativement en 2013.

Les émissions annuelles de N₂O pour la gestion par épandage de BP (100% BP) ont varié entre $0,12 \pm 0,03$ et $0,121 \pm 0,006$ t éq CO₂ t⁻¹ de BP secs gérés (en base N₂O : $0,0005 \pm 0,0001$ et $0,0005 \pm 0,00002$ t N₂O t⁻¹ BP secs), avec une moyenne pour les deux saisons de suivi de $0,12 \pm 0,01$ t éq CO₂ t⁻¹ de BP secs gérés (en base N₂O : $0,0005 \pm 0,00005$ t N₂O t⁻¹ BP secs).

4. Discussion

4.1. Émissions de l'enfouissement à l'échelle pilote de biosolides papetiers

4.1.1. Variations saisonnières et facteurs influents

4.1.1.1. Les émissions de protoxyde d'azote

Les BP mixtes ont émis de plus grandes émissions de N_2O que les BP primaires au cours des deux saisons de suivi (Tableau 5). Ce résultat s'expliquerait par les ratios C:N contrastants entre les deux types de BP (Figure 6 f) ayant influencé la disponibilité de l'azote (Camberato *et al.* 2006; Chantigny *et al.* 2013; Thangarajan *et al.* 2013). Les concentrations d'azote minéral en surface des BP mixtes, étant significativement supérieures à celles des BP primaires (Figure 5 f et Tableau 6), ont permis davantage d'émissions de N_2O par différents processus de nitrification ou de nitrification-dénitrification. Ainsi, les ratios C:N en surface et en profondeur inférieurs à 30 pour les BP mixtes (Figure 6 f) ont probablement limité l'immobilisation de l'azote dans les BP, alors que les ratios C:N en surface et en profondeur supérieurs à 40 pour les BP primaires y a probablement contribué (Figure 6 f) (Camberato *et al.* 2006; Chantigny *et al.* 2013; Thangarajan *et al.* 2013). La faible disponibilité de l'azote des BP primaires pourrait aussi résulter d'un faible taux de minéralisation, toutefois des études antérieures sur les BP primaires indiquent que le carbone y est généralement labile (Zibilsky 1987; Chantigny *et al.* 2000) favorisant ainsi la minéralisation de l'azote.

Le processus de nitrification méthanotrophe est possiblement la principale source d'émissions de N_2O mesurées pour l'enfouissement des BP mixtes, étant donné les conditions très favorables au processus lors de la principale période d'émissions de N_2O (Mandernack *et al.* 2000). Les plus grandes émissions de N_2O des BP mixtes ont été observées lors du 2^e et 3^e mois après enfouissement à l'échelle pilote (Figure 5 b); une période concordant avec les grandes émissions de CH_4 ainsi qu'avec la présence de grandes

concentrations de NH_4^+ dans les BP à la surface des fosses (Figure 5 d, f). Il est démontré que les bactéries méthanotrophes présentes à la surface des sites d'enfouissement municipaux peuvent émettre du N_2O (Mandernack *et al.* 2000) et que ces émissions sont stimulées par des concentrations élevées de NH_4^+ disponible en surface (Mandernack *et al.* 2000) et une hausse d'émissions de CH_4 (Mandernack *et al.* 2000; Zhang *et al.* 2009). D'ailleurs, le processus de nitrification méthanotrophe est considéré comme le principal processus d'émissions de N_2O en sites d'enfouissement municipaux (Mandernack *et al.* 2000; Rinne *et al.* 2005; Zhang *et al.* 2009).

Le processus de dénitrification a possiblement contribué aux émissions de N_2O mesurées dans les fosses d'enfouissement pilotes, tel qu'aussi suggéré par Bogner *et al.* (1999) et Rinne *et al.* (2005) pour les sites d'enfouissement municipaux. D'abord, la présence de NO_3^- à la surface des BP alors que les CVE des BP variaient entre 60 et 75 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$ (soit des EPEE approximatifs entre 70-90 % $\text{m}^3 \text{m}^{-3}$) (Figure 5, f) sont des conditions favorables aux émissions de N_2O par dénitrification, supposant que la disponibilité du carbone n'est pas limitante (Bateman et Baggs 2005). Aussi, Bogner *et al.* (1999) propose dans leur modèle conceptuel biogéochimique pour les sites d'enfouissement municipaux que la zone dominante de production de N_2O se situe à 1,00 m de profondeur. Les concentrations d'azote total dans les BP mixtes en 2013 étaient supérieures en profondeur (0,75 - 1,25 m) comparativement à la surface (0,00 – 0,20 m) (Figure 6, c), ainsi que probablement supérieur au contenu initial des BP selon nos données indirectes (Tableau 2). Cela suggère une migration significative de l'azote des BP en profondeur dans les fosses. Cet azote pourrait avoir migré sous forme de particules organiques ou sous forme de NO_3^- , une forme très mobile d'azote dans les sols (Brady et Weil 2008). Il est donc plausible que le processus de dénitrification ait aussi contribué aux émissions de N_2O générées dans des zones plus profondes des fosses lorsqu'en conditions d'anoxie adéquate.

Les émissions de N_2O semblent principalement associées à l'azote présent dans les BP du premier mètre de profondeur des fosses pilotes, considérant la nitrification méthanotrophe et la dénitrification comme principales sources de N_2O . D'une part, les méthanotrophes sont plus actifs dans les premiers 0,3-0,6 m sous la surface (De Visscher *et al.* 1999;

Mandernack *et al.* 2000), puisque les conditions aérobies, nécessaires à leur activité (Le Mer et Roger 2001) y sont davantage favorisées. D'autre part, l'azote organique et le NH_4^+ présent dans les BP nécessitent ultimement des conditions aérobies pour être nitrifié en NO_2^- , puis en NO_3^- (Bolan *et al.* 2004), soit des conditions probablement présentes uniquement dans le premier 0,5 à 1,0 m de profondeur. Aussi, l'azote total présent dans les BP semble migrer significativement vers le fond de la fosse (Figure 6 c). Or, peu importe la profondeur où se produisent les processus de dénitrification, les résultats suggèrent que seul l'azote du premier mètre de profondeur est susceptible d'être nitrifié et d'ensuite générer des émissions de N_2O par dénitrification.

4.1.1.2. Les émissions de méthane

Les BP mixtes ont émis plus de méthane que les BP primaires au cours des deux saisons de suivi (Tableau 5), ce qui s'expliquerait par des caractéristiques contrastantes entre ces types de BP. Premièrement, les BP primaires possèdent généralement de plus grandes proportions de cellulose et d'hémicellulose que les BP secondaires, ainsi que les BP mixtes (Bayr et Rintala 2012; Meyer et Edwards 2014), ce qui expliquerait que les BP primaires puissent générer davantage de méthane que les BP secondaires lors d'une digestion anaérobie en bioréacteurs (Bayr et Rintala 2012). Toutefois, en conditions non contrôlées, la décomposition anaérobie de BP primaires est généralement limitée par des carences en azote, en phosphore et en d'autres éléments traces (Ghosh et Taylor 1999; Bayr et Rintala 2012), ainsi qu'inhibé par la chute du pH (Bayr et Rintala 2012) et par des composés toxiques extraits des fibres de bois ou ajoutés lors des procédés (Meyer et Edwards 2014). Notamment, les composés sulfurés sont considérés comme le principal inhibiteur de la décomposition anaérobie de BP (Meyer et Edwards 2014) et sont largement utilisés dans la préparation de pâte chimique par le procédé au sulfate (procédé Kraft) (MDDEFP 2012). Or, les BP utilisés proviennent d'usines utilisant le procédé de trituration de pâtes Kraft (MDDELCC 2015), ce qui suggère un apport de composés sulfurés inhibiteurs de la décomposition anaérobie par les BP primaires des deux usines. Deuxièmement, la combinaison de BP primaires et de BP secondaires dans les BP mixtes a probablement

fourni une population de bactéries méthanogènes plus importante et plus robuste que celle qui était présente dans les BP primaires seuls. D'une part, les biomasses microbiennes sont essentiellement stimulées lors des traitements secondaires des eaux usées de papeteries, aussi appelés traitements biologiques, d'où sont issues les BP secondaires (CANMET 2005). Une plus grande proportion de BP secondaires suggère donc un plus grand apport initial de biomasse microbienne. D'autre part, le mélange de substrats organiques provenant de différentes matières résiduelles et différents traitements augmente la diversité des populations microbiennes (Mata-Alvarez *et al.* 2013 *cité dans* Meyer et Edwards 2014) et dilue les composés toxiques contenus dans chacun de ces substrats, ce qui augmente la robustesse de ces populations microbiennes (Meyer et Edwards 2014). Troisièmement, la présence de BP secondaires dans les BP mixtes semble avoir contribué au maintien de conditions d'humidité favorisant les conditions anaérobies strictes, nécessaires à l'activité des méthanogènes (Le Mer et Roger 2001). Les CVE en surface des BP mixtes lors du premier mois de suivi après enfouissement étaient supérieurs à ceux des BP primaires (Tableau 6), soit supérieurs à $75 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ (EPEE approximatifs supérieurs à $90 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$), comparativement aux CVE des BP primaires variant entre 30 et $40 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ (approximativement des EPEE entre 35 et $47 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$) (Figure 5 h). Ce résultat s'expliquerait du fait que les BP secondaires sont beaucoup plus difficiles à déshydrater que les BP primaires (CANMET 2005). Ainsi, les EPEE élevés réduisent la diffusion des gaz dans les sols (Rochette *et al.* 2004; Thangarajan *et al.* 2013) et donc le renouvellement de l'oxygène atmosphérique vers les sols. Il est donc suggéré que la plus grande rétention d'eau dans les BP mixtes comparativement au BP primaires, associée à la présence de BP secondaires, ait limité le renouvellement d'oxygène et ait ainsi contribué à la création des conditions anaérobies strictes, nécessaires à l'activité des méthanogènes (Le Mer et Roger 2001) dans les fosses de BP mixtes, ce qui n'était pas le cas pour les BP primaires.

Les plus grandes émissions de CH_4 observées pour les BP mixtes se produisent au cours du premier mois de suivi après enfouissement (Figure 5 d) et seraient tributaires des conditions observées les plus favorables aux émissions nettes de CH_4 en favorisant sa production et en limitant son oxydation. Premièrement, les conditions anaérobies strictes nécessaires aux

activités des méthanogènes (Le Mer et Roger 2001) étaient probablement présentes dans une plus large proportion des fosses d'enfouissement des BP mixtes alors que les CVE à la surface étaient élevés, soit supérieurs à $75 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ (EPEE approximatifs supérieurs à $90 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$), tel que discuté dans le paragraphe précédent. Lors de cette période, les températures dans la fosse pilote de BP mixtes (AEFK4) à 0,1, 0,5 et 1,0 m de profondeur atteignaient les valeurs maximales observées et étaient essentiellement toutes supérieures aux moyennes pour la saison estivale de 2013 (Figure 7 a et Tableau 8). Ainsi, lorsqu'en condition anaérobie, la hausse des températures augmente la production de méthane par les méthanogènes (Moore et Dalva 1993; Le Mer et Roger 2001). Les températures optimales pour les méthanogènes mésophiles étant entre 30 et 40°C (Le Mer et Roger 2001), la digestion anaérobie de BP mixtes en bioréacteur cible généralement une température opérationnelle de 35°C (Bayr et Rintala 2012). À titre comparatif en conditions non contrôlées, les températures optimales pour la production de CH_4 dans les tourbières tempérées et subarctiques sont entre 20 et 30°C (Dunfield *et al.* 1993) et une hausse de 10 à 20°C peut y doubler la production (Moore et Dalva 1993). Ainsi, les températures observées dans la fosse d'enfouissement pilote de BP mixtes (AEFK4) supérieures à 30°C à 0,1 et 0,5 m de profondeur et supérieures à 20°C à 1,0 m de profondeur lors du premier mois de suivi des gaz après enfouissement (Figure 7 a) suggèrent des conditions largement favorables à la production de CH_4 dans les fosses de BP mixtes. Deuxièmement, la capacité oxydative du CH_4 des méthanotrophes à la surface des BP mixtes aurait été limitée par différentes caractéristiques des BP lors des premiers mois de suivi après enfouissement. Notamment, les concentrations de NH_4^+ élevées, tel qu'observé en surface des BP mixtes (Figure 5 f), diminuent le taux d'oxydation du CH_4 des méthanotrophes (Boeckx *et al.* 1996). Aussi, l'augmentation des EPEE au-delà de $60 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ diminue l'oxydation des méthanotrophes (Castro *et al.* 1994), puisque ceux-ci nécessitent des conditions aérobies (Le Mer et Roger 2001), or les CVE à la surface des BP mixtes étaient largement supérieurs à ce seuil (EPEE approximatifs supérieurs à $90 \% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$) (Figure 5 h). Ces conditions suggèrent donc un faible taux d'oxydation du CH_4 à la surface des BP mixtes, ce qui aurait aussi contribué aux fortes émissions nettes observées.

Les plus grandes émissions de CH₄ des BP primaires se produisent à la seconde saison de suivi (Tableau 5); cela pourrait s'expliquer par l'évolution entre les saisons des conditions dans les BP plus favorables à la méthanogénèse. D'une part, les BP primaires provenaient d'une usine opérant des procédés de trituration de pâtes Kraft (MDDELCC 2015), ce qui suggère des concentrations initiales significatives de composés sulfurés inhibiteurs, celles-ci n'ayant pas été diluées par l'ajout de BP secondaires (Meyer et Edwards 2014). Les précipitations automnales de 2013 et printanières de 2014 ont potentiellement contribué au lessivage de composés inhibiteurs pour les méthanogènes dans les BP à des concentrations moindres. D'autre part, les populations initiales de méthanogènes étaient probablement faibles. La croissance des populations méthanogènes est lente (Meyer et Edwards 2014) et a possiblement été ralentie, voire inhibée, lors de la saison 2013 par le pH au centre des fosses inférieur au seuil minimal de 5,6 pour la croissance de plusieurs espèces méthanogènes (Garcia *et al.* 2000). La hausse de ce pH en 2014 a offert des conditions plus propices à la croissance de leurs populations (Garcia *et al.* 2000). Aussi, la diminution du pH au centre des fosses à la fin de la saison 2013 semble symptomatique d'une accumulation d'acide acétique produit par acétogénèse et de l'incapacité des méthanogènes à le transformer en CH₄ (Emkes *et al.* 2015). Les précipitations automnales de 2013 et printanières de 2014 pourraient aussi avoir réduit par lessivage cette accumulation suspectée. D'ailleurs, l'augmentation du pH à la fin de la saison 2014 (Figure 6) suggère un meilleur équilibre entre l'acétogénèse et la méthanogénèse (Emkes *et al.* 2015).

Des émissions journalières automnales de CH₄ supérieures à celles estivales ont été observées pour les deux types de BP enfouis et pour les deux saisons (Figure 5 d); ce genre de variations saisonnières a aussi été rapporté dans la littérature pour des sites d'enfouissement municipaux (Boeckx *et al.* 1996; Börjesson et Svensson 1997b). Les émissions automnales supérieures aux émissions estivales observées sont probablement tributaires d'une combinaison de facteurs variant différemment durant la saison et affectant les émissions nettes de CH₄. D'une part, l'augmentation du niveau de la nappe phréatique avec les pluies automnales (Figure 5 a, i) a probablement favorisé davantage les conditions anaérobies dans les fosses et ainsi stimulé la production de CH₄; de même que dans les sols

de tourbière où l'augmentation du niveau de nappe phréatique augmente les émissions de CH_4 (Moore et Dalva 1993). D'autre part, les pluies automnales ne semblent pas avoir influencé significativement les conditions aérobies de surface étant donné les faibles variations des CVE des BP observées (Figure 5 h). Ainsi, contrairement au cas observé par Boeckx *et al.* (1996), la hausse d'émissions nettes de CH_4 ne semble pas avoir été étroitement associée à une diminution de l'activité des méthanotrophes causée par l'augmentation de l'humidité de surface. Toutefois, la capacité d'oxydation du CH_4 par les méthanotrophes diminue avec la diminution de température (Czepiel *et al.* 1996). Les températures optimales pour leurs activités varient en fonction des types de méthanotrophes; celles de type II, auxquelles sont associées les plus grandes émissions de N_2O par nitrification méthanotrophe (Mandernack *et al.* 2000), ayant des activités oxydatives élevées seulement à 20°C et plus (Börjesson *et al.* 2004). Or, lorsque les émissions automnales de CH_4 ont été observées, les températures des BP de surface étaient inférieures à 15°C (Figure 5 c, d); alors que les températures à 1,0 m de profondeur environnaient les 20°C (Figure 7 a), soit des températures encore propices aux activités méthanogènes (Dunfield *et al.* 1993). Ainsi, la hausse des émissions nettes de CH_4 observé à l'automne seraient possiblement tributaires d'une diminution du taux d'oxydation à cause de la chute des températures de surface des BP (alors que la production de méthane se maintenait), tel qu'observé dans le cas de Börjesson et Svensson (1997b).

4.1.1.3. Les émissions de dioxyde de carbone

Les émissions de CO_2 sont semblables entre les deux types de BP (Tableau 5). Plusieurs facteurs confondants peuvent avoir contribué à ce bilan semblable, puisque les émissions de CO_2 peuvent provenir des processus de décomposition aérobie et anaérobie de la matière organique (Moore et Dalva 1993; IPCC 2006; Thangarajan *et al.* 2013), ainsi que de l'oxydation du CH_4 (Le Mer et Roger 2001).

Les émissions de CO_2 des BP primaires de la seconde saison sont plus élevées lors du mois de juillet, période où le niveau de la nappe phréatique est à son plus bas (Figure 5 e i). Cette

relation est cohérente avec les observations dans les tourbières où les émissions de CO₂ augmentent quand la nappe phréatique diminue (Moore et Dalva 1993), car les conditions deviennent propices à la décomposition aérobie.

4.1.2. Bilan des émissions de l'enfouissement

Les émissions de N₂O de surface associées aux deux mètres de profondeur de BP mixtes correspondent à 0,15 t éq CO₂ t⁻¹ BP secs enfouis (Tableau 9). Cette valeur d'émissions de N₂O est moindre de moitié par rapport à celle associée à l'enfouissement des biosolides municipaux d'un scénario d'étude de Brown *et al.* (2010) (c.-à-d. de 0,30 t éq CO₂ t⁻¹ de biosolides municipaux secs). Les émissions de N₂O de surface associées aux deux mètres de profondeur de BP primaires correspondent à 0,00021 t éq CO₂ t⁻¹ BP secs enfouis; une valeur d'émission relativement négligeable. Ce résultat concorde avec les lignes directrices du GIEC (2006), ainsi qu'avec le modèle du NCASI (2005) ne proposant aucune émission significative de N₂O. Ces résultats contrastants suggèrent que les émissions de N₂O de l'enfouissement des BP devraient être considérées et que celles-ci pourraient être basées sur le ratio C:N des biosolides, tel que dans le cas du calculateur du MEEB (SYLVIS 2009).

Les émissions nettes de CH₄ à la surface des fosses pilotes d'enfouissement des BP mixtes et des BP primaires reportées sur les deux mètres d'épaisseur pour deux saisons sans couvert nival correspondent à 0,072 et à 0,004 t éq CO₂ t⁻¹ de BP gérés, respectivement. D'une part, ces émissions nettes mesurées peuvent être comparées à des résultats calculés pour une période de deux ans avec une méthode de DPO considérant différents coefficients de potentiel de production de méthane (L₀) et de constante de vitesse de dégradation (k) proposés (NCASI 2005; Heath *et al.* 2010; SwedishEPA 2015) et considérant l'hypothèse d'un taux d'oxydation annuel moyen du CH₄ de 10% (Czepiel *et al.* 1996; IPCC 2006). Les émissions de CH₄ générées présentées au tableau 15 ont été calculées avec le modèle du NCASI (2005), utilisant une version simplifiée de la méthode de DPO du GIEC (IPCC 2006) (équation 9).

Équation 9 Méthane généré selon la méthode simplifiée de décomposition de premier ordre du NCASI (2005)

$$CH_4 \text{ généré pour une année donnée} = k \times R_y \times L_0 \times (e^{-k[T-Y]})$$

où CH_4 généré ($m^3 \text{ an}^{-1}$) est la quantité de CH_4 généré à partir de la matière décomposable pour une année donnée; k (an^{-1}) est la constante de réaction; T (an) est l'année pour laquelle les émissions sont estimées en terme d'années depuis l'ouverture du site; R_y ($t \text{ an}^{-1}$) est la masse de déchets éliminés à l'année Y ; L_0 ($m^3 \text{ CH}_4 \text{ t}^{-1} \text{ déchet}$) est le potentiel de production du CH_4 ; Y (an) est l'année du dépôt des résidus après l'ouverture du site; $T-Y$ (an) est le nombre d'années où les résidus ont été déposés dans le site avant l'année pour laquelle les émissions sont estimées.

Les émissions de CH_4 mesurées pour les BP mixtes pour une période de deux ans et un taux d'oxydation annuel moyen de 10% sont 1,9 fois supérieures aux émissions nettes calculées avec les coefficients proposées par Heath *et al.* (2010), 2,7 fois inférieures à celles calculées avec les coefficients proposés par le Swedish EPA (2015) et dans un ordre de grandeur comparable à celles calculées avec les coefficients proposés par le NCASI (2005). Les émissions mesurées pour les BP primaires sont 10 à 50 fois inférieures aux émissions nettes calculées avec les coefficients proposés par les trois études. D'autre part, les émissions pour le dispositif d'enfouissement pilote ont été mesurées sur une très courte période de temps comparativement à la période de référence de 50 ans recommandée pour la documentation des émissions (IPCC 2006), ce qui suggère une sous-estimation significative des émissions totales des BP. À titre indicatif, les émissions de CH_4 ont été calculées par méthode de DPO avec les différents coefficients pour la période de 50 ans considérant l'hypothèse que ces émissions soient totales (IPCC 2006). Ainsi, les émissions nettes de CH_4 calculées lors des deux premières années représenteraient une faible part des émissions nettes totales de l'enfouissement des BP, soit 5%, 7% et 17% en utilisant les coefficients de Heath *et al.* (2010), du NCASI (2005) et du Swedish EPA (2015), respectivement. Ces calculs suggèrent aussi une large variation des émissions nettes totales de CH_4 de l'enfouissement des BP, soit entre 0,697 et 1,419 t éq $CO_2 \text{ t}^{-1}$ BP secs, pour un site sans récupération des gaz. Comparativement, l'enfouissement de biosolides

municipaux avec système de récupération des gaz d'un cas d'étude de Brown *et al.* (2010) émettrait globalement 0,40 t éq CO₂ t⁻¹ BP secs.

Tableau 15 Émissions de méthane (CH₄) générées et émissions de méthane nettes calculées avec le modèle du NCASI (2005) utilisant une version simplifiée de la méthode de décomposition de premier ordre du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (IPCC 2006) avec des coefficients de constante de vitesse de dégradation (k) et de potentiel de production de méthane (L₀) proposés par différentes études pour l'enfouissement de matières résiduelles de papetières sur une période de 2 ans et de 50 ans.

Études Matières enfouies	Coefficients		Émissions de CH ₄ générées		Émissions nettes de CH ₄ (10 % taux d'oxydation)	
	k	L ₀	2 ans	50 ans	2 ans	50 ans
	an ⁻¹	kg CH ₄ t ⁻¹ BP secs	t éq CO ₂ t ⁻¹ BP secs ∅	t éq CO ₂ t ⁻¹ BP secs ∅	t éq CO ₂ t ⁻¹ BP secs ∅	t éq CO ₂ t ⁻¹ BP secs ∅
Heath <i>et al.</i> (2010)						
Toutes matières de papetières	0,013	57,5	0,042	0,775	0,037	0,697
NCASI (2005)						
Toutes matières de papetières	0,03	71,4	0,118	1,577	0,106	1,419
Swedish EPA (2015)						
Tous types de BP	0,09	45	0,217	1,303	0,195	1,173

BP, Biosolides papetiers

∅ PRG du CH₄ de 28 (IPCC, 2013).

Différentes pistes de réflexion peuvent en partie expliquer les grandes différences entre les émissions de N₂O et de CH₄ observées et les valeurs par défaut rapportées dans les modèles (NCASI 2005; IPCC 2006), notamment les différences entre les méthodes utilisées pour déterminer les facteurs d'émissions et la représentativité des conditions du dispositif d'enfouissement à l'échelle pilote.

4.1.2.1. Les méthodes d'estimation des émissions

Les méthodes d'estimation des émissions de l'enfouissement relevées dans la littérature et celle utilisée dans la présente étude sont distinctes, ce qui peut influencer différemment les résultats. D'une part, les estimations d'émissions de CH₄ proposées dans la littérature pour l'enfouissement de BP sont toutes issues de modèles de DPO. Or, les modèles de DPO tendent typiquement à surestimer les GES produits par l'enfouissement, puisque leurs

coefficients sont déterminés à partir d'expériences calibrées en conditions idéales pour la production de CH_4 (Cossu *et al.* 1996 *cité dans* Ishii et Furuichi 2013). Les conditions plus ou moins propices à la décomposition anaérobie varient en fonction des conditions environnantes de température et de pluviométrie dans un même site d'enfouissement et entre les sites (Mosher *et al.* 1999; Ishii et Furuichi 2013), ainsi qu'en fonction des méthodes de gestion du site influençant la compaction des matières, la recirculation du lixiviat et la disposition en conditions semi-aérobies ou anaérobies (Lou et Nair 2009; Emkes *et al.* 2015). Ainsi, les coefficients des modèles de DPO pourraient être déterminés pour des conditions plus réalistes des sites d'enfouissement afin de mieux estimer les émissions réelles (Ishii et Furuichi 2013). Une autre source d'incertitudes des modèles de DPO est que la décomposition du carbone organique ne suit pas nécessairement une décomposition de premier ordre, puisue d'autres facteurs que la biodégradabilité des composés peuvent influencer la décomposition (IPCC 2006). Par exemple, dans l'expérience de Bayr et Rintala (2012), la digestion anaérobie de BP primaires en bioréacteur a permis la méthanisation de 70-73% de la cellulose du substrat grâce à des enrichissements en azote et au contrôle du pH, autrement la méthanogénèse aurait été limitée. Ces limitations auraient peut-être favorisé d'autres processus de fermentation, comme ceux permettant la conversion de cellulose en éthanol (Moreau *et al.* 2015). Ainsi, les différents coefficients des méthodes de DPO proposés dans la littérature pourraient surestimer les émissions de CH_4 des BP.

D'autre part, certaines limitations de représentativité sont associées à l'approche par mesure directe des GES, telle qu'utilisée dans la présente expérience, parce que les valeurs mesurées ne sont obtenues que pour une superficie spécifique et pour une courte période de temps (Spokas *et al.* 2003). Les émissions d'enfouissement mesurées dans la présente étude proviennent de superficie d'un dispositif *ex-situ*, puisque le contexte de recherche initiale rendait impossible logistiquement et techniquement d'effectuer des mesures en site d'enfouissement réel. Bien que le dispositif d'enfouissement pilote ait été aménagé de manière à reproduire autant que possible les conditions d'enfouissement, la représentativité des conditions dans les fosses d'enfouissement pilotes demeure une source d'incertitude

importante (discuté ultérieurement à la section 4.1.2.2). Quant à la fenêtre de temps, un suivi des émissions sur deux saisons semble adéquat pour estimer les émissions de N_2O d'un site fermé considérant la diminution drastique des émissions N_2O et des concentrations de NH_4^+ observée en surface des BP (Figure 5 b, f), un suivi sur deux ans des émissions de N_2O après la fermeture d'un site d'enfouissement municipal est aussi proposé par Börjesson et Svensson (1997a). Toutefois, le suivi des émissions de CH_4 d'un site d'enfouissement devrait être réalisé sur de plus longues périodes de temps. La période de demi-vie de décomposition des déchets de bois et de paille dans des sites d'enfouissement humide en climat tempéré et boréal est estimée à 23 ans (IPCC 2006). En conditions optimales pour la décomposition, la stabilisation des matières organiques de sites d'enfouissement situés aux États-Unis semble nécessiter minimalement d'une période de 5 ans (Kelly *et al.* 2006). De plus, les conditions contrôlant les émissions de CH_4 peuvent évoluer entre les années, tel que le suggère l'augmentation graduelle ou subite après six années d'enfouissement de la température des centres de masse de certaines cellules d'enfouissement (Koerner et Koerner 2006). La présence suspectée de composés inhibiteurs (composés sulfurés) dans les BP primaires aurait limité la méthanogénèse lors de la première saison de suivi. La hausse du pH dans les BP primaires en 2014 (Figure 6 b), plus favorable aux activités des méthanogènes (Le Mer et Roger 2001) et la hausse des émissions nettes de CH_4 en 2014 (Tableau 5) suggèrent des émissions ultérieures possiblement significatives sur le bilan. Ainsi, la courte période de suivi dans les fosses pilotes d'enfouissement pourrait largement sous-estimer les émissions de CH_4 d'une tonne de BP secs gérés.

4.1.2.2. Représentativité des fosses d'enfouissement pilotes

Les températures observées dans les fosses d'enfouissement pilotes semblent avoir été moins favorables à la production de CH_4 que celles observées dans le site d'enfouissement industriel de la papetière et dans les sites d'enfouissement municipaux. Les températures annuelles moyennes (novembre 2013 à novembre 2014) dans la fosse d'enfouissement pilote de BP mixtes étaient de 9,9 et 8,4°C à 1,0 et 2,0 m de profondeur, soit inférieures de

2,1 et 5,3°C, respectivement, à celles observées dans le site d'enfouissement industriel. Ainsi, les BP dans le site d'enfouissement de la papetière, bien qu'estimés plus vieux que ceux du dispositif à l'échelle pilote, étaient plus chauds. Or, les températures en surface des sites d'enfouissement municipaux (0,0 – 2,0 m) varient généralement davantage à cause des conditions climatiques que de l'âge des matières enfouies (Bäumler et Kögel-Knabner 2008). Les températures annuelles moyennes du dispositif d'enfouissement pilote sont aussi inférieures aux températures annuelles moyennes observées sous la surface de plusieurs sites d'enfouissement municipaux variant de 15 à 50°C (Koerner et Koerner 2006; Bäumler et Kögel-Knabner 2008). Ces plus faibles températures observées s'expliqueraient par l'absence d'un effet de masse du dispositif à l'échelle pilote à cause de sa faible profondeur comparativement aux sites d'enfouissement d'échelle industrielle. Cela suggère que les dimensions des fosses du dispositif pilote étaient moins propices à la production de CH₄, ce qui tendrait à sous-estimer les émissions.

La nappe phréatique observée dans les fosses d'enfouissement pilotes était en moyenne à 0,78 m de profondeur; alors que la surface de la nappe phréatique n'a pas été observée lors de l'installation des sondes de température à 2,0 m de profondeur au site d'enfouissement de la papetière en novembre 2013. Les processus de décomposition pourraient avoir été influencés différemment par la hauteur de la nappe phréatique. D'un côté, la décomposition de la matière organique dans les sites d'enfouissement municipaux est principalement limitée par un manque d'humidité (Kelly *et al.* 2006; Bäumler et Kögel-Knabner 2008). L'optimum d'humidité pour la décomposition est évalué entre 50 et 60 % g g⁻¹ (Zavala et Funamizu 2005; Kelly *et al.* 2006). Sous ce seuil, le taux de décomposition diminue probablement à cause d'une diminution de la disponibilité des nutriments (en phase aqueuse) pour les microorganismes (Zavala et Funamizu 2005). La recirculation du lixiviat dans les sites d'enfouissement permet généralement d'accélérer la décomposition de la matière organique (Kelly *et al.* 2006; Bäumler et Kögel-Knabner 2008) et d'augmenter la quantité de CH₄ généré (Emkes *et al.* 2015). Or, la nappe phréatique élevée dans les fosses d'enfouissement pilotes a possiblement favorisé un taux d'humidité suffisant dans les BP pour permettre la solubilisation et le transport des nutriments. À l'inverse, une humidité

excessive dans un site d'enfouissement peut lessiver les populations microbiennes, ainsi que réduire le pH et la production de CH_4 (Emkes *et al.* 2015). Les matières saturées en eau demandent également davantage d'énergie pour augmenter ou maintenir leur température, ce qui est défavorable aux activités microbiennes. La nappe phréatique élevée dans les fosses d'enfouissement pilotes pourraient donc avoir défavorisé l'activité des méthanogènes. Finalement, les lignes directrices du GIEC (IPCC 2006) associent un facteur de correction des émissions de CH_4 supérieur aux sites d'enfouissement dont la nappe phréatique est près de la surface étant donné les conditions plus anaérobies attendues. Ainsi, la nappe phréatique élevée dans les fosses d'enfouissement pilotes était potentiellement favorable et défavorable à la méthanogénèse, il est donc difficile d'évaluer comment cette différence comparativement aux sites d'enfouissement à l'échelle industrielle a globalement influencé les émissions nettes de CH_4 .

La conception du dispositif d'enfouissement pilote n'a pas permis de prendre en compte l'effet de gestion d'un site. Les fosses d'enfouissement pilotes de 2 m de profondeur ont été emplies de BP le 15 mai 2013, alors que les BP sont enfouies dans le site d'enfouissement industriel sur une base hebdomadaire et augmentent d'environ 1 m de hauteur sur l'ensemble de la superficie du site chaque année, selon les estimations des opérateurs (Conversation personnelle avec un responsable du service technique de l'usine PFR Kénogami). Ainsi, le suivi des émissions effectué sur les fosses d'enfouissement pilotes s'apparente au suivi des émissions d'un site sans activités régulières d'enfouissement. L'effet de l'ajout régulier de BP frais ayant des rapports C:N faibles sur les émissions de surface de N_2O n'a pas été mesuré. Or, les observations de la présente étude suggèrent la stimulation de fortes émissions de N_2O lorsque des matières organiques riches en azote sont en surface des matières enfouies. Ainsi, le dispositif d'enfouissement pilote sous-estimerait possiblement les émissions de N_2O des BP enfouis ayant un faible taux d'immobilisation de l'azote, soit les BP ayant des rapports C:N inférieurs à 30 (Camberato *et al.* 2006; Chantigny *et al.* 2013; Thangarajan *et al.* 2013).

4.1.3. Résultats globaux du dispositif d'enfouissement pilote

Les émissions de N_2O et de CH_4 de l'enfouissement des BP mixtes et des BP primaires se sont avérées significativement différentes dans la présente étude; cela confirme l'hypothèse de recherche que différents types et provenances de BP secs gérés par enfouissement peuvent générer des émissions significativement différentes (Tableau 9). Notamment, malgré que les BP provenaient de papeteries utilisant des procédés de production de papier semblables (MDDELCC 2015), des différences dans le traitement des eaux usées et la gestion des résidus peuvent générer des BP aux caractéristiques chimiques contrastantes et des émissions à l'enfouissement pouvant être de 3 et 2 ordres de grandeur différents pour le N_2O et CH_4 , respectivement.

L'absence d'un facteur d'émissions de N_2O pour l'enfouissement des BP dans le modèle du NCASI (2005) et les lignes directrices du GIEC (IPCC 2006), semble adéquate pour les BP primaires, mais inadaptée aux BP mixtes. La présente étude suggère qu'un facteur d'émissions de N_2O devrait être considéré pour les BP enfouis, tel qu'attribué aux biosolides municipaux par le MEEB (Brown *et al.* 2010) en fonction du ratio C:N. Toutefois, les facteurs d'émissions de N_2O par tonne de BP géré demeurent peu documentés; d'une part, parce que le ratio C:N des BP est très variable (Faubert *et al.* 2016) et que la présente expérimentation ne fournit que deux points d'observation; d'autre part, parce qu'il est fortement suspecté que le dispositif d'enfouissement pilote sous-estime les émissions de N_2O des BP enfouis. Or, étant donné que les émissions de N_2O sont possiblement essentiellement générées par l'azote du premier mètre d'épaisseur de BP (discuté à la section 4.1.1.1) et que le dispositif pilote d'enfouissement ne considère pas l'effet de gestion d'un site en service (discuté à la section 4.1.1.2), il est suggéré de considérer les émissions de N_2O de surface comme provenant de 1,0 m d'épaisseur de BP (Tableau 9), pour corriger la sous-estimation suspectée des facteurs ici calculés. Ainsi, les BP mixtes génèreraient $0,30 \text{ t éq } CO_2 \text{ t}^{-1}$ BP secs enfouis d'émission de N_2O , un facteur très semblable à celui de l'enfouissement des biosolides municipaux du cas étudié par Brown *et al.* (2010). Des émissions de N_2O semblables pour l'enfouissement des BP mixtes et des biosolides municipaux sont cohérentes puisque ces deux types de biosolides ont

généralement des contenus en azote semblables (Elliott et Mahmood 2007; Meyer et Edwards 2014; Faubert *et al.* 2016).

Les émissions de CH₄ mesurées au cours des deux années sans couvert nival pour la gestion par enfouissement des BP mixtes sont généralement inférieures aux émissions calculées à partir des coefficients proposés dans la littérature (NCASI 2005; Swedish EPA 2015). Très peu d'études rapportent des facteurs d'émissions estimées à partir de mesures sur les BP (Faubert *et al.* 2016) et les coefficients de vitesse de dégradation et de potentiel de production de méthane sont très variables (par exemple de 0,013 à 0,09 an⁻¹ et de 45 à 71,4 kg CH₄ t⁻¹ déchet; Tableau 15). Cette variabilité s'expliquerait tant par les différentes conditions d'enfouissement que les différentes caractéristiques physico-chimiques moyennes des BP modélisées pour les calculs de DPO (IPCC 2006). L'incertitude associée aux émissions de CH₄ demeure très importante; des efforts de quantification supplémentaire sont donc nécessaires (Faubert *et al.* 2016), puisque le CH₄ est le principal gaz associé à l'enfouissement de matière organique.

L'incertitude sur la représentativité du dispositif à l'échelle pilote par rapport aux conditions observées en site d'enfouissement (tel que discuté à la section 4.1.2.2) et la variabilité des conditions entre les sites d'enfouissement (Lou et Nair 2009; Emkes *et al.* 2015) démontrent la nécessité de valider les facteurs d'émissions en conditions réelles. De plus, une approche par mesures directes des GES dans plusieurs sites d'enfouissement de papetière fournirait à la littérature des valeurs complémentaires à celles fournies par des méthodes de calcul de DPO et tout en échantillonnant une diversité de BP enfouis.

Certaines bonifications dans la méthode d'échantillonnage des gaz auraient amélioré la qualité et l'analyse des résultats de ce dispositif. D'une part, l'absence de suivi des émissions des fosses d'enfouissement pilotes lors du premier mois après enfouissement est une erreur technique due au manque d'expérience; les émissions mesurées auraient possiblement influencé significativement le bilan, ainsi que fourni des informations pertinentes pour aider à la compréhension des processus et paramètres d'émissions. D'autre part, l'échantillonnage des gaz à différentes profondeurs dans les fosses à l'aide de sonde

appropriée aurait fourni des informations intéressantes pour mieux identifier les principales zones de production de N_2O et de CH_4 dans les fosses d'enfouissement pilotes, ainsi que pour évaluer le taux d'oxydation du CH_4 à la surface des fosses. Ainsi, il aurait été possible de mieux décrire la production et l'oxydation du CH_4 dans les émissions nettes.

4.2. Émissions saisonnières de l'épandage agricole de biosolides papetiers

4.2.1. Variations saisonnières

Plusieurs études ont observé que la fertilisation minérale et organique à des doses agronomiques génère la majorité des émissions de N_2O sur de courtes périodes de temps après fertilisation, soit au cours des 40 premiers jours (Rochette *et al.* 2008b; Chantigny *et al.* 2010), tel que pour la présente étude (Figure 8 b), et parfois jusqu'à 8 semaines (Lessard *et al.* 1996; Bhandral *et al.* 2007; Chantigny *et al.* 2013). Des pics d'émissions de N_2O ont aussi parfois été observés à l'automne suite à des fertilisations printanières (Rochette *et al.* 2008a; Pelster *et al.* 2012). Toutefois, lorsque ces émissions sont non distinctes entre les traitements, telles que pour le pic d'émissions automnal observé à la saison 2013, Pelster *et al.* (2012) suggèrent qu'elles résultent de conditions environnementales du sol plutôt que des fertilisants.

Une relation temporelle entre la pluviométrie, par son impact sur l'EPEE, et les pics d'émissions de N_2O a été observée lors des deux saisons de suivi (Figure 8 a, b, h). Cette relation était particulièrement attendue lors des premières semaines suivant la fertilisation azotée, période où les NO_3^- sont plus abondants dans les sols (Rochette *et al.* 2000; Dobbie et Smith 2003).

Des émissions anormalement élevées de N_2O , telles que mesurées dans une des parcelles témoin, sont occasionnellement rejetées lorsque le poids relatif de la donnée sur les calculs est considéré comme démesuré (Pelster *et al.* 2012). Ce type d'observations est associé au phénomène de point chaud (en anglais *hot spot*) initialement décrit comme des zones localisées où l'intensité de la respiration microbienne crée une grande demande en O_2

(Parkin 1987) et récemment redéfini comme de petits volumes de sol où les taux d'activités biologiques et d'interactions sont beaucoup plus élevés que dans les conditions moyennes de sol (Kuzakov 2010). Les émissions anormalement élevées de CO_2 et de N_2O , mesurées à quelques reprises au cours de la saison 2013, dont celles du 3 octobre, suggèrent que cette parcelle témoin avait une concentration supérieure de points chauds, ceux-ci étant considérés comme la cause majeure de la variation spatiale des émissions de N_2O des sols à l'échelle locale fine (Parkin 1987; Grossel *et al.* 2014).

Considérant que 19,2% des émissions de N_2O de la saison 2014 se sont produites lors des deux premières semaines, l'estimation des émissions de N_2O non mesurées de la saison 2013 était nécessaire afin d'éviter une probable importante sous-estimation des émissions cumulées. L'extrapolation du patron d'émission saisonnière a été appuyée sur les données de pluviométrie et des hypothèses de probables conditions de sol (EPEE, NH_4^+ , NO_3^-). D'abord, les émissions de N_2O au cours de la première semaine après épandage de 2013 ont été considérées comme non significatives étant donné les probables faibles concentrations initiales de NO_3^- dans les sols. Notamment, les concentrations observées au 16^e jour pour les traitements de fertilisation semblent supérieures à celles du témoin (Figure 8, g), ce qui suggère que la fertilisation azotée, plutôt que les antécédents du sol, était le principal tributaire des pics de NO_3^- en 2013. Aussi, la nitrification de tout le NH_4^+ apporté par fertilisation minérale ou organique en contexte agricole québécois nécessite entre 7 à 21 jours (Chantigny *et al.* 2007). La nitrification requiert des conditions aérobies (Bolan *et al.* 2004) et est ralentie par un EPEE élevé (Thompson et Pain 1989). Il est donc probable que les précipitations abondantes (Figure 8 a) et la rétention d'eau élevée dans les sols (observation visuelle) lors de la première semaine après fertilisation de 2013 aient limité la nitrification, ce qui aurait maintenu les concentrations de NO_3^- dans les sols à de faibles niveaux. Suite aux événements de pluie de la première semaine, les concentrations en NH_4^+ , puis de NO_3^- ont dû augmenter rapidement pour atteindre les pics de concentrations de NO_3^- observés au 16^e jour. Des émissions de N_2O importantes ont probablement été générées par ces grandes concentrations de NO_3^- disponibles dans les sols, alors que l'EPEE était élevé.

Les conditions saisonnières de 2013 semblent avoir été plus favorables à la minéralisation et à la nitrification de l'azote des traitements de fertilisants, comparativement à la saison 2014, puisque l'exposition aux nitrates était significativement distincte entre le témoin et les traitements de fertilisation pour l'interaction des facteurs traitement \times an (Tableau 14). Aussi, les pics de concentration de NO_3^- observés des traitements de fertilisation semblent supérieurs en 2013 qu'en 2014, alors que les témoins apparaissent semblables (Figure 8 g).

Les très faibles émissions et suppressions de CH_4 observées étaient cohérentes aux attentes, puisque les pratiques culturales en sol arable ne favorisent pas les activités méthanogènes, ni l'oxydation du CH_4 (Le Mer et Roger 2001). D'une part, les conditions anaérobies strictes nécessaires aux bactéries méthanogènes (Le Mer et Roger 2001) sont peu fréquentes en sol agricole, même pour les sols faiblement drainés (Ball *et al.* 2004). D'autre part, les pratiques de fertilisation azotée avec de l'urée et de l'ammonium inhibent le potentiel d'oxydation du CH_4 atmosphérique (Nesbit et Breitenbeck 1992); probablement parce que les enzymes d'oxydation, exposées aux NH_4^+ des sols, sont sollicitées pour des processus de nitrification (Nesbit et Breitenbeck 1992; Castro *et al.* 1994) et à cause de la toxicité du NO_2^- . La destruction des micro-niches aérophiles supportant les méthanotrophes par le labourage des sols est aussi considérée comme une cause de la diminution de la suppression de CH_4 des sols arables cultivés intensivement (Sitaula *et al.* 2000).

Les émissions journalières de CO_2 plus importantes observées lors des huit premières semaines comparativement aux semaines suivantes (Figure 8 d) semblent induites par une stimulation de la respiration microbienne suite à l'application des traitements, ainsi que par la respiration racinaire du blé en croissance. D'une part, la fertilisation a probablement contribué significativement à l'augmentation de la respiration microbienne, puisque l'activité microbienne peut être stimulée par l'ajout de fertilisant organique et d'engrais minéral (Kuz'yakov et Bol 2006; Chen *et al.* 2014). Le labourage du sol a probablement aussi stimulé la respiration des populations microbiennes dans tous les traitements, puisque le travail du sol augmente la disponibilité des substrats organiques minéralisables suite à la fragmentation des agrégats ce qui stimule l'activité des décomposeurs (Beare *et al.* 1994). La stimulation ou l'inhibition ponctuelle de l'activité microbienne par l'application des

traitements est associée à l'effet d'amorçage (en anglais *priming effect*) (Kuzyakov et Bol 2006; Thangarajan *et al.* 2013; Chen *et al.* 2014), défini comme un changement à court terme de la dynamique de décomposition de la matière organique du sol suite à une modification des sols (ex : ajout de fertilisant, exsudation racinaire) (Thangarajan *et al.* 2013). Cet effet temporaire, pouvant durer quelques jours à quelques semaines, peut causer de grandes émissions de CO₂ et de N₂O (Kuzyakov et Bol 2006). D'autre part, la respiration racinaire peut représenter de 10 à 90% des émissions de CO₂ du sol dépendamment de l'espèce végétale et de la période de l'année (Hanson *et al.* 2000). Ainsi, les augmentations des émissions de CO₂ observées en début de saison concorderaient avec la période de rapide croissance végétative du blé, suivi de diminutions des émissions en juillet et en août alors que les plants murissaient (observations visuelles). Rochette *et al.* (1991) ont d'ailleurs observé des variations saisonnières semblables des émissions de CO₂ suite à la plantation de blé de printemps (*T. aestivum* L.). Finalement, les hausses ponctuelles d'émissions de CO₂ observées suite aux récoltes du blé seraient attribuables à la décomposition d'exsudats racinaires à haut poids moléculaire et de racelles des plants de blé, des composantes nécessitant quelques jours pour se décomposer (Domanski *et al.* 2001).

4.2.2. Facteurs contrôlant les émissions

Plusieurs facteurs contrôlant les émissions suggèrent un rôle prédominant de la dénitrification dans la production des émissions N₂O lors des deux saisons, tel qu'attendu en sol argileux (Rochette *et al.* 2008b; Chantigny *et al.* 2010). Aussi, les émissions de N₂O des deux saisons semblent avoir été limitées par des facteurs de contrôle de la dénitrification différents et influencés par les conditions météorologiques.

La relation temporelle entre les pics d'émissions de N₂O et la pluviométrie, telle qu'ici observée, semble principalement associée à la stimulation du processus de dénitrification. Les cycles de réhumidification des sols favorisent la minéralisation de l'azote et du carbone

(Birch 1958) et peuvent stimuler les émissions de N_2O par dénitrification lorsque les conditions de sols deviennent suffisamment anoxiques (Rochette *et al.* 2004).

Les conditions de disponibilité de l'oxygène du sol contrôlées par l'EPEE semblent avoir été plus favorables aux émissions de N_2O par dénitrification en 2013 qu'en 2014. D'une part, les pics d'émissions observés lors de la saison 2013 surviennent alors que les EPEE (mesurés au champ avec l'humidimètre) avoisinent ou dépassent le seuil d'augmentation du taux de dénitrification de $50\text{-}60\% \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ d'EPEE observé en sols argileux (Linn et Doran 1984; Chantigny *et al.* 1998) (Figure 8, b, h). D'autre part, bien que la comparaison entre les EPEE mesurés au champ à deux profondeurs différentes entre 2013 et 2014 soit biaisée, mais attendu que les EPEE saisonniers moyens (calculés à partir du contenu gravimétrique en eau des échantillons de sols mesurés en laboratoire) de 2013 étaient supérieurs à ceux de 2014 (Figure 10 a) ($P_{(1,4)}=0,0044^*$), les pics d'émissions en 2014 surviennent alors que les EPEE (mesurés au champ avec l'humidimètre) semblent inférieurs à ceux de 2013 et donc probablement inférieurs au seuil critique de dénitrification. Or, sous ce seuil, le processus de nitrification autotrophe contribue significativement ou devient la source dominante de production de N_2O (Bateman et Baggs 2005) et les émissions générées diminuent significativement (Dobbie et Smith 2001; Bateman et Baggs 2005). Néanmoins, l'effet combiné de l'EPEE et de la stimulation de la respiration microbienne, contrôlant la disponibilité de l'oxygène du sol (Tiedje 1988), pourraient avoir fourni les conditions anoxiques adéquates pour la dénitrification en 2014 particulièrement lors de la stimulation ponctuelle de l'activité microbienne après l'application des traitements (c.-à-d. lors de l'effet d'amorçage) (Kuzakov et Bol 2006), période de plus grandes émissions de CO_2 observées (Figure 8 d).

La disponibilité des NO_3^- était favorable aux émissions de N_2O par dénitrification lors des deux saisons et davantage influente en 2014. Les concentrations minimales de NO_3^- de 1,2 à $2,6 \text{ mg } NO_3^- \text{-N kg}^{-1}$ de sol observées lors des deux saisons (Figure 9 a, b) sont un peu plus faibles que le seuil minimal favorisant la dénitrification observé à $5 \text{ mg } NO_3^- \text{-N kg}^{-1}$ de sol (Ryden 1983; Chantigny *et al.* 1998), mais s'apparentent à celui de $2 \text{ mg } NO_3^- \text{-N kg}^{-1}$ de sol (Chantigny *et al.* 2013). De plus, l'exposition aux nitrates, une mesure intégrée de la

disponibilité du substrat (Burton *et al.* 2008), s'est avérée un facteur de contrôle significatif et prépondérant des émissions de N_2O de 2014, tel qu'attendu pour un sol argileux (Rochette *et al.* 2008b; Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012; Chantigny *et al.* 2013). Cette relation significative suggère que la majorité des émissions de N_2O ont été produites par la dénitrification (Burton *et al.* 2008; Zebarth *et al.* 2008). L'absence de réponse significative des émissions saisonnières de 2013 à l'exposition aux nitrates est possiblement en partie due à l'abondance des NO_3^- au cours des premières semaines après l'application des traitements (Figure 8, g). Cela suggère que les émissions de N_2O par dénitrification étaient davantage limitées ou influencées par un ou plusieurs autres facteurs que l'exposition des organismes dénitrifiants aux NO_3^- .

La disponibilité de carbone est généralement un facteur moins ou peu influant des émissions de N_2O dans les sols argileux, puisque ceux-ci sont généralement suffisamment riches en matière organique pour ne pas limiter la dénitrification (Chantigny *et al.* 2010; Chantigny *et al.* 2013). L'abondance moyenne de matière organique mesurée dans le sol avant comme après l'application des traitements en 2014 (Tableau 10) est d'ailleurs supérieure à 5,1%, concentration considérée comme comblant les besoins de substrat en carbone pour les organismes dénitrifiants (Petersen *et al.* 2008). La relation significative entre les émissions cumulées de CO_2 , une donnée indirecte de la disponibilité du carbone (Rochette *et al.* 2004; Petersen *et al.* 2008; Pelster *et al.* 2012) et les émissions cumulées de N_2O (Figure 10 b) pourrait indiquer un effet indirect contribuant aux conditions anaérobies par la stimulation de la respiration microbienne (van Groenigen *et al.* 2005).

La culture de blé semble avoir influencé davantage les émissions de N_2O de 2013 que celles de 2014, en concurrençant davantage les organismes dénitrifiants pour l'obtention des NO_3^- (Figure 10 d). D'une part, les cultures ont un effet direct sur les concentrations d'azote minéral dans les sols et donc sur la disponibilité des substrats pour les organismes nitrifiants et les organismes dénitrifiants (Chantigny *et al.* 1998). Les conditions saisonnières de 2013 ont favorisé une plus grande production céréalière que celles de la saison 2014, tel qu'en témoignent les rendements obtenus (Tableau 13). D'ailleurs, les rendements moyens de blé de la saison 2013 (c.-à-d. entre $4,0 \pm 0,6$ et $5,5 \pm 0,5$ t grain ha^{-1})

ont été élevés comparativement à un éventail de conditions culturales du blé en contexte québécois (Ziadi *et al.* 2008). Les meilleurs rendements de 2013 pourraient être attribués à une meilleure disponibilité de l'eau et des NO_3^- lors de la période de germination et de rapide croissance végétative du blé. Ainsi, il est suggéré que les plants de blé plus vigoureux aient davantage concurrencé les organismes dénitrifiants pour l'obtention des NO_3^- en 2013 qu'en 2014. D'autre part, une relation linéaire négative significative entre les CUA et les émissions de N_2O au rendement (Figure 10 d), tel que documenté par van Groenigen *et al.* (2010), n'est observée qu'en 2013. Cette différence de significativité entre les années est probablement causée par la plus petite amplitude de variation des valeurs de CUA de 2014, cela demeure toutefois un indice d'une plus grande efficacité du prélèvement de l'azote par le blé en 2013, ayant des implications sur les émissions de N_2O .

4.2.3. Bilan des émissions saisonnières de la gestion de biosolides papetiers par épandage agricole

Dans la présente étude, l'épandage de BP a émis davantage de N_2O par surface que l'engrais minéral pour chacune des saisons. Ce résultat diverge des observations d'autres études sur sol à texture fine en climat humide froid où les émissions de surface sont semblables entre les fertilisants organiques et l'engrais minéral (Rochette *et al.* 2008b; Pelster *et al.* 2012) ou moindres pour les fertilisants organiques (Chantigny *et al.* 2010; Chantigny *et al.* 2013). Quant aux émissions de N_2O de surface de la substitution de l'engrais minéral par des BP, elles ont évolué différemment entre les saisons; augmentant de façon linéaire en 2013 avec augmentation de la dose de BP dans la substitution et variant de manière quadratique en 2014. Considérant que les facteurs de contrôle de la dénitrification étaient différents entre les saisons (tel que discuté précédemment à la section 4.2.2), ces tendances différentes d'émissions de la substitution suggèrent que la nature des fertilisants dans les traitements a influencé différemment les facteurs contrôlant les émissions de N_2O en fonction des conditions saisonnières. De manière générale, Chantigny *et al.* (2010) et Pelster *et al.* (2012) suggèrent que pour les sols riches en matières organiques, les émissions de N_2O soient principalement contrôlées par la disponibilité de

l'azote dans le sol. Or, dans la présente étude avec la calibration des doses épandues selon les recommandations agronomiques, l'exposition aux nitrates est semblable entre les types de fertilisant (Min vs BP), ainsi que pour leur substitution, pour chacune des saisons de suivi (Tableau 14). D'autres facteurs contrôlant les émissions de N_2O par dénitrification, plutôt que la disponibilité des NO_3^- dans les sols, auraient donc influencé autant sinon davantage les émissions des types de fertilisants. Premièrement, en 2013, il est suggéré que la culture ait prélevé plus efficacement les NO_3^- disponibles dans les sols comparativement à 2014 (tel que discuté précédemment à la section 4.2.2), résultant en de meilleurs rendements de blé (Tableau 13). Considérant que les émissions de N_2O par dénitrification nécessitent la disponibilité de NO_3^- et de carbone (Knowles 1982), il serait possible que les racines des plants aient mieux concurrencé les populations microbiennes pour obtenir l'azote nitrifié provenant de l'urée, comparativement à l'azote nitrifié provenant des BP, celui-ci étant plus étroitement lié à du carbone labile (provenant des BP). Ainsi, bien que le substrat minéral ait été autant disponible dans les sols entre les différents traitements, les NO_3^- provenant de l'engrais minéral auraient été moins utilisés par les organismes dénitrifiants que par les plantes et auraient donc généré moins d'émissions de N_2O . Deuxièmement, les émissions cumulées de CO_2 avaient une relation significative avec les émissions de N_2O en 2014 (Figure 10 b); ainsi l'évolution quadratique des émissions de N_2O pour les traitements de substitution (Tableau 11) pourrait en partie être expliquée par l'évolution quadratique des émissions de CO_2 des six premières semaines de 2014 (Tableau 12). Or, la nature des fertilisants (Guenet *et al.* 2010; Chen *et al.* 2014) et leurs doses (Guenet *et al.* 2010) peuvent influencer les activités des populations microbiennes (et leur respiration). D'une part, la fertilisation minérale seule a généralement un impact minimal sur les activités enzymatiques et la respiration microbienne, mais son impact devrait être considéré en relation avec la disponibilité du carbone dans les sols (Chen *et al.* 2014). Ainsi, il est possible que l'application d'engrais minéral seul ait influencé certaines activités microbiennes (c.-à-d. occasionné un effet d'amorçage), puisque le sol des unités expérimentales étant riche en carbone (Petersen *et al.* 2008) avec des contenus de matières organiques moyens de $5,5 \pm 0,6 \%$ (Tableau 10). D'autre part, la fertilisation organique cause un effet d'amorçage pouvant globalement émettre ou immobiliser du carbone et de

l'azote dans le sol (Kuzyakov et Bol 2006) et elle occasionne généralement une augmentation des émissions cumulées de CO₂ (Kuzyakov et Bol 2006; Chen *et al.* 2014). Cette stimulation ponctuelle de la respiration microbienne tend à augmenter, mais pas nécessairement de manière linéaire avec l'augmentation de la dose de matière organique appliquée, possiblement à cause de mécanismes simultanés et antagonistes de régulation des activités des différentes populations microbiennes (Guenet *et al.* 2010). Aussi, l'ajout combiné de matière organique et d'un engrais minéral peut avoir un effet synergique stimulant davantage la respiration microbienne, comparativement à l'ajout de matière organique uniquement (Chen *et al.* 2014). Ainsi, la substitution de l'engrais minéral par les BP pourrait influencer de manière non linéaire les émissions de CO₂ en stimulant différents mécanismes régulant les activités des populations microbiennes, dans les semaines suivant l'application des traitements, soit lors de l'effet d'amorçage. Dans la présente étude, cela semble avoir influencé significativement et indirectement les émissions de N₂O de la substitution de l'engrais minéral par les BP en 2014.

Les émissions de surface de N₂O mesurées pour l'épandage de BP mixte (100% BP) sont généralement d'un ordre de grandeur supérieures à ceux de plusieurs types de matières organiques épandues sur un sol à texture fine en climat froid et humide, ayant des rapports C:N relativement semblables, soit variant entre 13:1 et 19:1 (Rochette *et al.* 2008b; Pelster *et al.* 2012; Chantigny *et al.* 2013). Elles sont quatre fois supérieures aux résultats de la principale étude comparative publiée sur les BP mixtes (Chantigny *et al.* 2013), sont trois fois supérieures à l'épandage de fumier de vaches laitières (Rochette *et al.* 2008b) et plus de deux fois supérieurs à l'épandage de fumier de poulet (Pelster *et al.* 2012) (Tableau 16). Bien que les doses épandues dans toutes ces études soient basées sur les recommandations agronomiques locales du CRAAQ (Hébert *et al.* 2010), la dose d'épandage de BP mixtes ici appliquée pourrait expliquer les plus grandes émissions de surface. D'une part, la dose d'azote total appliquée (643 et 692 kg N ha⁻¹ en 2013 et 2014, respectivement) est de quatre à sept fois supérieure aux études comparables (Tableau 16). Or, la méta-analyse de van Groenigen *et al.* (2010) suggère qu'au-delà d'une application de 190 kg N ha⁻¹, les émissions de surface tendent à augmenter rapidement. Toutefois, cette relation est

davantage démontrée pour les engrais minéraux que pour les fertilisants organiques (Helgason *et al.* 2005), puisque les matières organiques peuvent influencer significativement plusieurs facteurs stimulant les émissions de surface (disponibilité du carbone et de l'azote, humidité du sol) (Velthof *et al.* 2003). Néanmoins, l'exposition aux nitrates était un facteur de contrôle significatif des émissions en 2014 et l'exposition aux nitrates moyenne des BP mixtes (soit $1,44 \text{ g NO}_3^- \text{-N j kg}^{-1}$; Tableau 14) semble avoir été supérieure à celle de Chantigny *et al.* (2013) (étant de $0,9454 \text{ g NO}_3^- \text{-N j kg}^{-1}$). D'autre part, la dose de carbone total appliquée dans cette étude (dose moyenne pour les deux saisons de $11667 \text{ kg C ha}^{-1}$) est de quatre à sept fois supérieure à celles des fertilisants organiques des études de Rochette *et al.* (2008b), Pelster *et al.* (2012) et Chantigny *et al.* (2013), avec 1697, 1280 et $2671 \text{ kg C ha}^{-1}$, respectivement (calculs effectués à partir des données publiées). Cette dose de carbone ici supérieure pourrait avoir davantage stimulé les émissions de N_2O par dénitrification, en stimulant la respiration microbienne (van Groenigen *et al.* 2005). Baggs *et al.* (2002) suggèrent d'ailleurs une intense stimulation de la respiration par l'ajout de BP mixtes pour expliquer les grandes émissions de N_2O , comparativement aux autres matières organiques de son expérimentation (résidus de culture).

Tableau 16 Synthèse d'études sélectionnées sur les émissions de l'épandage agricole de matières organiques en climat froid et humide

Type de fertilisant– C:N moyen – Taux d'application N total (kg ha ⁻¹) moyen	Type de sol ☺	Culture	Émissions de surface (kg N ₂ O-N ha ⁻¹)	FEIF- N ₂ O-N (%)	Émissions aux rendements (g N ₂ O-N kg ⁻¹ N de la partie aérienne* ou du grain**	CUA (%)	Émissions par tonne sèche de MO gérée (t éq CO ₂ t ⁻¹)	Références
BP mixte – 18:1– 667	LA	Blé	11,2 ± 1,0	1,3 ± 0,1	106 ± 12**	6 ± 2	0,12 ± 0,01	1
Urée – 110	LA	Blé	4,3 ± 0,7	1,8 ± 1,4	41 ± 10**	42 ± 15	-	1
Témoin – 0	LA	Blé	2,3 ± 1,0		25 ± 9**		-	1
BP mixte – §19:1– 147	A	Maïs	3,3 ± 0,4	0,9 ± 0,2	§37 ± 8*	15	§0,092 ± 0,007	2, 3
BP primaire – §66:1 – 140	A	Maïs	1,5 ± 0,1	-0,4 ± 0,2	§23 ± 3*	-26	§-0,007 ± 0,003	2, 3
B Lisier de porc brut – §5:1 – 106	A	Maïs	6,1 ± 1,1	2,5 ± 0,5	§59 ± 11*	26	0,95 ± 0,18	2, 3
CaNH ₄ NO ₃ – 150	A	Maïs	8,3 ± 1,6	4,2 ± 0,9	§70 ± 15*	37	-	2, 3
Témoin – 0	A	Maïs	2,0 ± 0,3	-	§27 ± 4*	-	-	2, 3
BP mixte – 25:1 – 135	SL	Brocolis	6,8 ± 2,1	§4,9 ± 1,5	n.d.	n.d.	§0,039 ± 0,012	4
Témoin – 0	SL	Brocolis	0,18 ± 0,08	-	n.d.	-	-	4
Fumier de poulet– §14:1 – 90	AL	Blé	§4,8 ± 1,2	2,0	‡56 ± 9**	n.d.	§0,186 ± 0,009	5
Lisier de porc brut – §6:1 – '88	AL	Blé	§6,0 ± 3,6	3,4	‡79 ± 39**	n.d.	-	5
CaNH ₄ NO ₃ – 90	AL	Blé	§6,7 ± 1,8	4,1	‡87 ± 3**	n.d.	-	5
Témoin – 0	AL	Blé	§2,8 ± 1,3	-	‡49 ± 12**	-	-	5
Fumier de poulet– §14:1 – 90	LS	Blé	§2,0 ± 0,8	1,8	‡31 ± 3**	n.d.	§0,14 ± 0,06	5
Lisier de porc brut – §6:1 – '88	LS	Blé	§0,9 ± 0,2	0,6	‡15 ± 3**	n.d.	-	5
CaNH ₄ NO ₃ – 90	LS	Blé	§0,7 ± 0,2	0,3	‡11 ± 2**	n.d.	-	5
Témoin – 0	LS	Blé	§0,4 ± 0,1	-	‡9 ± 1**	-	-	5

Tableau 16 Synthèse de quelques études sur les émissions de l'épandage agricole de matières organiques en climat froid et humide (suite)

Type de fertilisant– C:N moyen – Taux d'application N total (kg ha ⁻¹) moyen	Type de sol [§]	Culture	Émissions de surface (kg N ₂ O-N ha ⁻¹)	FEIF- N ₂ O-N (%)	Émissions aux rendements (g N ₂ O-N kg ⁻¹ N de la partie aérienne* ou du grain**	CUA (%)	Émissions par tonne sèche de MO gérée (t éq CO ₂ t ⁻¹)	Références
Fumier vaches laitières – §13:1 – 153	A	Maïs	§3,7	n.d.	§33*	n.d.	n.d.	6
NH ₄ NO ₃ – 150	A	Maïs	§3,0	n.d.	§17*	n.d.	-	6
Fumier vaches laitières – §13:1 – 153	L	Maïs	§1,6	n.d.	§11*	n.d.	n.d.	6
NH ₄ NO ₃ – 150	L	Maïs	§1,4	n.d.	§9*	n.d.	-	6
Lisier de porc brut – §5:1 – 106	A	Maïs	7,10	3,1	§50**	§34	-	7, 8
Lisier de porc décanté – §5:1 – 100	A	Maïs	7,43	3,5	§52**	§36	-	7, 8
Lisier de porc filtré – §2:1 – 103	A	Maïs	9,72	5,0	§71**	§28	-	7, 8
Lisier de porc digéré – §2:1 – 104	A	Maïs	7,67	3,5	§54**	§37	-	7, 8
Lisier de porc flocculé – §1:1 – 96	A	Maïs	8,87	4,8	§66**	§32	-	7, 8
NH ₄ NO ₃ – 100	A	Maïs	11,61	6,6	§83**	§34	-	7, 8
Témoin – 0	A	Maïs	2,63	-	§25**	-	-	7, 8
Fumier vaches laitières – §26:1 – 170	LL	Maïs	0,7	0,24	n.d.	n.d.	§0,016	9
Fumier vaches laitières – §26:1 – 339	LL	Maïs	1,0	0,21	n.d.	n.d.	§0,014	9
Témoin – 0	LL	Maïs	0,3	-	n.d.	n.d.	-	9

[§] Abréviation des types de sol : A argile; AL Argile-limoneuse; LA Loam-argileux; LL Loam-limoneux; L Loam; LS Loam-sableux; LS Sable-loameux

§ Valeurs calculées à partir des données publiées

† Valeurs corrigées suite à une conversation personnelle

BP, biosolides papetiers; CaNH₄NO₃, Nitrate d'ammonium et de calcium ; NH₄NO₃, Nitrate d'ammonium

¹Présente étude, ²Chantigny *et al.* (2013); ³Gagnon *et al.* (2012); ⁴Baggs (2002); ⁵Pelster *et al.* (2012); ⁶Rochette *et al.* (2008b); ⁷Chantigny *et al.* (2010);

⁸Chantigny *et al.* (2008); ⁹Lessard *et al.* (1996)

Les émissions de N_2O aux rendements sont plus faibles ou semblables pour l'engrais minéral comparativement aux BP dépendamment de la saison, toutefois les émissions de la substitution augmentent linéairement pour les deux saisons avec l'augmentation de la dose de BP dans le traitement (Tableau 11). Ces résultats divergent des précédentes observations où les émissions aux rendements sont parfois semblables entre les engrais minéraux et les fertilisants organiques (Pelster *et al.* 2012) ou supérieures pour les engrais minéraux (Chantigny *et al.* 2013). De plus, les émissions de N_2O aux rendements de l'épandage des BP ici observé sont environ le double ou davantage de celles relevées dans la littérature pour les BP mixtes (Chantigny *et al.* 2013), pour le fumier de vache laitière (Rochette *et al.* 2008b), pour le fumier de poulet (Pelster *et al.* 2012), ainsi que pour les biosolides et le lisier de porc (Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012; Chantigny *et al.* 2013) pour un sol à texture fine en climat froid et humide (Tableau 16). Premièrement, ces résultats contrastants entre la présente étude et les données de la littérature semblent en partie tributaires de la synchronisation des apports d'azote et des besoins culturaux. Notamment, une bonne synchronisation contribue à maximiser le CUA et à réduire les risques de pertes d'azote par émissions ou par lessivage (Tremblay *et al.* 2010). Or, les émissions de N_2O au rendement tendent à diminuer avec l'augmentation du CUA (van Groenigen *et al.* 2010). Cette relation significative a d'ailleurs été observée pour la saison 2013 (indistinctement des traitements) (Figure 10 d) alors que les CUA diminuaient significativement linéairement avec la substitution (Tableau 14), ce qui suggère que les CUA des deux types de fertilisants ont influencé les émissions aux rendements de la substitution. De plus, les CUA des BP ici épandus (Tableau 14) sont inférieurs à ceux des BP mixtes et aux biosolides de lisier de porc (Gagnon et Ziadi 2012) et à ceux du lisier de porc (Chantigny *et al.* 2008) (Tableau 16), ce qui, en accord avec les conclusions de van Groenigen *et al.* (2010), expliquerait les émissions aux rendements supérieures de la présente étude. Deuxièmement, les émissions de N_2O aux rendements, étant un coefficient reliant les impacts environnementaux et la productivité agronomique (van Groenigen *et al.* 2010), peuvent être influencées par des facteurs contrôlant les émissions de N_2O de surface ayant moins ou peu d'impact sur le rendement des cultures, telles que les conditions de disponibilité de l'oxygène dans le sol. Notamment, l'augmentation quadratique des

émissions de N_2O de surface de la substitution pour la saison 2014 (Tableau 11) semble en partie tributaire de la stimulation de la respiration microbienne (effet d'amorçage) par les plus grandes doses de carbone appliquées (Guenet *et al.* 2010) (tel que discuté précédemment dans cette section), alors que les rendements de blé n'ont pas été significativement influencés par les traitements de fertilisation (Tableau 13). Troisièmement, les cultures de longue saison végétative, comme le maïs, la pomme de terre et les prairies, utilisent plus efficacement l'azote minéralisable des matières organiques que les cultures à courte saison de croissance comme les céréales à paille (Hébert *et al.* 2010; Tremblay *et al.* 2010). La majorité des précédentes études ont été réalisées avec des cultures de maïs, ce qui pourrait en partie expliquer les émissions aux rendements sur le blé, ici observées, plus élevées. Néanmoins, les résultats obtenus sont tout de même le double des émissions aux rendements de l'épandage de fumier de poulet avec culture de blé (Pelster *et al.* 2012).

Les FEIF- N_2O des traitements avec épandage de BP sont globalement semblables, bien que parfois inférieurs à ceux de l'engrais minéral dépendamment des conditions saisonnières (Tableau 11). Le FEIF- N_2O avoisinant de $-0,2 \pm 2,3 \%$ pour l'engrais minéral en 2013 était inattendu et est ici expliqué par une excellente synchronisation de l'apport d'azote à la culture, ainsi que par la variabilité naturelle du champ, notamment où une parcelle témoin était caractérisée par la présence significative de points chauds. Le FEIF- N_2O ici observé pour les BP mixtes est légèrement supérieur à celui observé par Chantigny *et al.* (2013) (BP mixtes à ratio C:N de 19:1) et un peu inférieur à celui du fumier de poulet (ratio C:N de 14:1) (Pelster *et al.* 2012) (Tableau 16) ainsi qu'au FEIF- N_2O régional estimé à 1,7% pour les provinces de l'est du Canada en climat humide (Rochette *et al.* 2008c). Les FEIF- N_2O du lisier de porc (ayant des ratios C:N variant entre 1:1 et 5:1) sont systématiquement supérieurs à ceux des BP en variant entre 2,5 et 5,0% pour des sols à texture fine (Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012; Chantigny *et al.* 2013) (Tableau 16). Considérant que l'exposition aux nitrates soit un facteur de contrôle significatif des émissions de N_2O en sol argileux (Rochette *et al.* 2008b; Chantigny *et al.* 2010; Pelster *et al.* 2012; Chantigny *et al.* 2013) et que l'exposition aux nitrates dans un sol argileux

augmente avec la diminution du ratio C:N des matières organiques épandues (Chantigny *et al.* 2013), il était attendu que les matières organiques ayant un ratio C:N inférieur à celui des BP (tel le fumier de poulet et le lisier de porc) aient aussi un FEIF-N₂O supérieur à celui des BP. Le FEIF-N₂O ici observé pour les BP mixtes est également légèrement supérieur à celui de 1% proposé par le GIEC (2006) peu importe le type de sol et de fertilisant.

4.2.4. Résultats globaux du dispositif d'épandage agricole

Dans le contexte agricole du dispositif, l'utilisation de l'engrais minéral a émis moins de N₂O que l'épandage de BP, considérant les coefficients de comparaison agronomique d'émissions de surface et d'émissions au rendement de la culture. Ces conclusions divergent de celles obtenues par Chantigny *et al.* (2013) en contexte agricole québécois plus méridional avec une culture de maïs. Ainsi, l'épandage agricole de BP en remplacement complet de l'engrais minéral comme traitement de fertilisation sur un sol à texture fine peut augmenter ou diminuer les émissions de N₂O, possiblement en fonction de la zone climatique et du type de culture.

En zone climatique plus froide comme le Saguenay-Lac-Saint-Jean, le coefficient d'efficacité de l'azote des BP mixtes diminue (Hébert *et al.* 2010), ce qui nécessite l'épandage de plus grandes doses de BP pour répondre aux besoins en azote d'une culture. Or, l'augmentation des doses de matières organiques appliquées stimule la respiration microbienne (Guenet *et al.* 2010) et, en réduisant la disponibilité de l'oxygène dans le sol, peut stimuler significativement les émissions de N₂O par dénitrification (van Groenigen *et al.* 2005). Cette situation a été observée dans la présente étude en zone climatique froide. C'est-à-dire que les doses importantes de BP appliquées pour répondre aux recommandations locales de fertilisation en azote ont significativement influencé les émissions cumulées de CO₂ des six premières semaines (Tableau 12) et que les émissions cumulées de CO₂ des six premières semaines ont significativement influencé (et de manière prépondérante en 2014; $r^2_{\text{ajusté}}=0,32$) les émissions de N₂O (Figure 10 b). D'autre part, la

combinaison des BP avec un engrais minéral pour un traitement de fertilisation en zone climatique froide sur sol à texture fine semble une manière efficace de diminuer les émissions saisonnières de N_2O comparativement à l'épandage de BP seul (Tableau 11). Cela pourrait être tributaire d'un effet synergique de la combinaison de l'engrais minéral et des BP sur l'augmentation de la productivité de la culture (Hébert *et al.* 2010); le prélèvement plus efficace des NO_3^- par les plantes diminuant la disponibilité du substrat minéral pour les microorganismes dénitrifiants (tel que discuté précédemment à la section 4.2.2 et 4.2.3). Cela pourrait aussi être tributaire d'une stimulation moindre de la respiration microbienne permettant de maintenir la disponibilité de l'oxygène du sol à des concentrations ne stimulant pas significativement les émissions de N_2O par dénitrification.

Les types de cultures de longue saison végétative valorisent mieux l'azote minéralisable de la matière organique que les cultures de courte saison de croissance (Hébert *et al.* 2010; Tremblay *et al.* 2010). La comparaison des résultats de cette expérience à ceux de la littérature suggère aussi que l'épandage des BP mixtes est mieux adapté à la culture de maïs qu'à la culture de blé pour maximiser l'efficacité agronomique de l'utilisation de l'azote et ainsi diminuer les émissions aux rendements. Toutefois, il faudrait pouvoir comparer les émissions aux rendements de ces deux cultures dans un même dispositif et considérer la possibilité d'effectuer l'épandage de BP préalablement aux semailles du blé pour favoriser une meilleure synchronisation entre le pic de minéralisation de l'azote des BP et les besoins du blé. D'autre part, le maïs est une culture de longue saison végétative mieux adaptée aux régions plus chaudes. Au Saguenay-Lac-Saint-Jean, environ le tiers des superficies cultivées produisent des céréales et des protéagineux, dont les principales cultures sont l'avoine, l'orge, le blé, le canola, le soya et le maïs-grain (MAPAQ 2011); le maïs et le maïs-grain étant donc relativement peu cultivés dans la région. Néanmoins, le Saguenay-Lac-Saint-Jean cultive environ 44% de ses superficies agricoles en fourrages et pâturages et 2% en pomme de terre (MAPAQ 2011), soit des cultures de plus longue saison de croissance que le blé.

Pour adapter les recommandations d'épandage de BP, en région froide dans une perspective de lutte aux changements climatiques, il serait nécessaire d'évaluer les impacts sur les

émissions de différentes combinaisons entre les périodes d'épandage (printanières, automnales) préalables ou non aux semailles, les doses épandues et les types de culture.

4.3. Comparaison d'émissions saisonnières de la gestion des biosolides papetiers mixtes par enfouissement et par épandage

Les observations lors de la présente étude suggèrent que les émissions directes (c.-à-d. les émissions de décomposition) de la gestion de BP mixtes par enfouissement soient supérieures à celles de leur gestion par épandage, malgré que plusieurs incertitudes aient été soulevées. Cette conclusion est cohérente avec d'autres études comparant les émissions de décomposition de la gestion par enfouissement et par épandage de biosolides municipaux (Brown *et al.* 2010; Liu *et al.* 2013).

Les émissions de GES de la gestion des BP mixtes par enfouissement sur une période de deux ans excluant la période nival dans la présente étude ont été mesurées à $0,22 \pm 0,02$ t éq CO₂ t⁻¹ de BP secs gérés, dont le deux tiers provient des émissions de N₂O et le tiers des émissions de CH₄. Avec les coefficients proposés dans la littérature pour l'enfouissement de BP, les émissions de CH₄ calculées sur une période de deux ans sont inférieures (Heath *et al.* 2010) et supérieures (NCASI 2005; Swedish EPA 2015) à celles ici mesurées. Toutefois, ces émissions calculées sur deux ans représentent seulement 5 à 17% des émissions totales potentielles de CH₄ sur une période de 50 ans (IPCC 2006). La courte période des suivis des émissions de méthane suggère donc une sous-estimation importante des émissions totales de GES. Le contexte *ex-situ* des mesures d'émissions de la gestion des BP par enfouissement dans la présente étude représente aussi une source importante d'incertitudes, puisque plusieurs conditions de l'enfouissement à l'échelle pilote semblent pouvoir influencer différemment les émissions nettes de CH₄ et N₂O d'une tonne de BP comparativement à celles attendues en site d'enfouissement réel (c.-à-d. en contexte *in-situ*). Mesurer les émissions de l'enfouissement en conditions réelles sur plusieurs sites d'enfouissement de papetières s'avère nécessaire pour valider les facteurs d'émission de la gestion des BP ici mesurés et les facteurs d'émissions calculés avec des méthodes de DPO.

Globalement, le contexte de l'étude semble tendre davantage à sous-estimer les émissions de l'enfouissement des BP mixtes qu'à les surestimer, ce qui suggère que le facteur de $0,22 \pm 0,02 \text{ t } \text{eq CO}_2 \text{ t}^{-1}$ de BP secs gérés est une émission minimale relativement conservatrice.

Les émissions mesurées de la gestion d'une tonne de BP mixtes épandus sur un sol à texture fine en contexte québécois de $0,12 \pm 0,01 \text{ t } \text{eq CO}_2 \text{ t}^{-1}$ de BP sont légèrement supérieures, mais cohérentes avec celles de la principale étude comparative, de $0,092 \pm 0,007 \text{ t } \text{eq CO}_2 \text{ t}^{-1}$ de BP mixtes (valeurs calculées à partir des données publiées; Tableau 16) (Chantigny *et al.* 2013). L'estimation des émissions de la gestion par épandage d'une tonne de BP mixtes nécessite davantage de données scientifiques afin d'augmenter la robustesse d'un facteur moyen d'émissions pour effectuer des comparaisons plus générales entre les modes de gestion. Néanmoins, les émissions mesurées d'une tonne de BP mixtes gérés par épandage sont dans des intervalles d'émissions comparables à la gestion par épandage d'une tonne de matières organiques ayant un ratio C:N entre 14:1 et 26:1, soit des ratios typiques pour les BP mixtes (Faubert *et al.* 2016); ces émissions variant entre 0,014 et 0,186 t eq CO₂ t⁻¹ de matière organique épandue (Tableau 16). D'autre part, les émissions mesurées de la gestion des BP par épandage sont relativement conservatrices, puisqu'elles sont obtenues dans un contexte agronomique maximisant les émissions potentielles. C'est-à-dire que l'expérimentation est réalisée en sols à texture fine dans l'est du Canada, considérés comme produisant des émissions de 50% supérieures aux les sols à texture grossière (Rochette *et al.* 2008c). Aussi, la dose de BP épandus est calculée en fonction des recommandations agronomiques locales (Hébert *et al.* 2010) pour la région la plus nordique épandant des BP en contexte québécois, soit le Saguenay-Lac-Saint-Jean (Larose et Hébert 2014). Ainsi, il est probable que les émissions de l'épandage d'une tonne de BP mixtes à des doses agronomiques sur des sols agricoles à texture grossière ou dans des régions plus chaudes soient comparables ou moindres à celles ici mesurées.

Dans le cadre d'une analyse de cycle de vie comparative de la barrière au tombeau, il est important de rappeler que les émissions des deux modes de gestion comparés précédemment sont exclusivement associées aux processus de décomposition, excluant les

émissions des opérations en amont ainsi que les émissions indirectes. Premièrement, les émissions de GES du transport de biosolides de leur site de production, soit à la papetière, vers un site d'épandage agricole ou vers un site d'enfouissement municipal peuvent avoir un impact significatif sur le bilan carbone (Villeneuve et Dessureault 2011; Durocher 2015). Une attention particulière doit donc être accordée aux modes de transport des BP et aux distances à parcourir lors de l'identification des scénarios de disposition à privilégier. Deuxièmement, bien que les tendances sur les émissions directes de GES de la substitution des engrais minéraux par les BP soient contextuelles et puissent être supérieures, semblables ou inférieures, les émissions indirectes évitées pour la substitution des engrais minéraux contribuent à réduire le bilan net de GES de l'épandage agricole des BP. Le calculateur du MEEB utilise la valeur par défaut d'évitement d'émissions lors de la substitution des engrais minéraux de $4 \text{ kg éq CO}_2 \text{ kg}^{-1} \text{ N}$ épandu sans distinction entre l'azote disponible et l'azote total (Brown *et al.* 2010). Ainsi, les émissions évitées par la substitution des engrais minéraux par les BP épandus dans le cas de la présente étude selon le calculateur du MEEB équivalent à $0.087 \text{ t éq CO}_2 \text{ t}^{-1}$ de BP secs. Troisièmement, la séquestration du carbone dans les sols et les sites d'enfouissement représente des émissions évitées. Le MEEB accorde un taux de séquestration de carbone dans les sols agricoles de $25 \text{ t éq CO}_2 \text{ 100 t}^{-1}$ de biosolides municipaux secs épandus et considère le carbone non décomposé comme du carbone stocké. En effet, les sites d'enfouissement peuvent être un réservoir de carbone important lorsque les déchets se dégradent lentement (Bogner *et al.* 2007). Ainsi pour la gestion de BP, le questionnement sur la séquestration de carbone dans les sols agricoles et les sites d'enfouissement est un enjeu important à réfléchir puisque ces biosolides contiennent une quantité significative de lignine, soit un composé difficilement décomposable en condition anaérobie, mais compostable en condition aérobie (Kelly *et al.* 2006; Lou et Nair 2009). Considérer ou non une séquestration de carbone pour l'enfouissement des BP pourrait avoir un impact important sur le bilan net d'émissions de cette filière de gestion et influencer les choix de stratégies dans le cadre d'une lutte aux changements climatiques. Ainsi, plusieurs facteurs d'émissions directes et indirectes sont à prendre en compte pour la comparaison des filières de gestion des BP par enfouissement et

par épandage agricole afin d'assurer une comparaison complète du bilan carbone de la gestion de fin de vie.

5. Conclusion

L'étude dont fait l'objet ce mémoire fait partie d'un plus vaste projet de quantification des émissions de GES des principaux modes de disposition des BP, auxquels s'ajoute la gestion par combustion avec récupération de chaleur (Faubert *et al.* 2015). Dans le cadre de ce projet, les émissions de GES de la gestion des BP mixtes par enfouissement semblent supérieures à celles de la gestion par épandage agricole, ainsi qu'aux émissions de la gestion par combustion (Faubert *et al.* 2015). Ainsi, le détournement des BP de l'enfouissement vers des modes de gestion moins émetteurs, comme semblent l'être l'épandage agricole et la combustion, pourrait être un moyen de réduction des émissions des fabriques de pâtes et papiers. Toutefois, une grande incertitude demeure sur les émissions de GES des différents modes de gestion des BP. D'une part, les valeurs ici mesurées pour l'enfouissement ne comparent que deux types de BP sur une courte période dans un dispositif *ex-situ* et les émissions comparables proviennent de calculs avec des méthodes de DPO dont les coefficients ont essentiellement été déterminés en laboratoire. Il est donc nécessaire de valider les facteurs d'émissions de GES de l'enfouissement des BP en conditions industrielles réelles. D'autre part, très peu d'études ont mesuré les émissions de N₂O de l'épandage agricole des BP (Baggs *et al.* 2002; Chantigny *et al.* 2013; Faubert *et al.* 2016); or ces émissions varient selon plusieurs facteurs agronomiques et climatiques, notamment la nature des sols, la zone climatique, les doses appliquées, la période d'épandage, la pluviométrie saisonnière et le type de cultures. Davantage de points d'observation sont donc nécessaires pour mieux prendre en compte la variabilité de contexte d'épandage des BP et leurs émissions potentielles.

En somme, une multiplication des mesures de GES serait nécessaire pour augmenter la précision des émissions et assurer des scénarios de comparaison robustes des émissions de GES évitées par un changement de gestion. Ces informations sont essentielles pour assister les politiques de gestion des matières organiques résiduelles, soit celles qui ont le moins d'impact sur les émissions de GES. Ces nouvelles connaissances seraient utiles pour la prise de décision quant à l'initiation de l'élaboration d'un nouveau protocole d'obtention de crédits compensatoires pour le système de plafonnement et d'échange de droits d'émissions

de GES dans le cadre du marché du Western Climat Initiative en vigueur au Québec (Faubert *et al.* 2015).

RÉFÉRENCES

Angers DA, Chantigny MH, MacDonald JD, Rochette P et Côté D. 2009. Differential retention of carbon, nitrogen and phosphorus in grassland soil profiles with long-term manure application. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 86 : 225-229.

Ashrafi O, Yerushalmi L et Haghighat F. 2013. Greenhouse gas emission by wastewater treatment plants of the pulp and paper industry - Modeling and simulation. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 17 : 462-472.

Baggs EM. 2008. A review of stable isotope techniques for N₂O source partitioning in soils: recent progress, remaining challenges and future considerations. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 22 : 1664-1672.

Baggs EM, Rees RM, Smith KA et Vinten AJA. 2000. Nitrous oxide emission from soils after incorporating crop residues. *Soil Use and Management*, 16 : 82-87.

Baggs EM, Rees RM, Castle K, Scott A, Smith KA et Vinten AJA. 2002. Nitrous oxide release from soils receiving N-rich crop residues and paper mill sludge in eastern Scotland. *Agriculture Ecosystems and Environment*, 90 : 109-123.

Ball BC, McTaggart IP et Scott A. 2004. Mitigation of greenhouse gas emissions from soil under silage production by use of organic manures or slow-release fertilizer. *Soil Use and Management*, 20 : 287-295.

Bateman EJ et Baggs EM. 2005. Contributions of nitrification and denitrification to N₂O emissions from soils at different water-filled pore space. *Biology and Fertility of Soils*, 41 : 379-388.

Bäumler R et Kögel-Knabner I. 2008. Spectroscopic and Wet Chemical Characterization of Solid Waste Organic Matter of Different Age in Landfill Sites, Southern Germany. *Journal of Environmental Quality*, 37 : 146-153.

Bayr S et Rintala J. 2012. Thermophilic anaerobic digestion of pulp and paper mill primary sludge and co-digestion of primary and secondary sludge. *Water Research*, 46 : 4713-4720.

Beare MH, Hendrix PF et Coleman DC. 1994. Water-Stable Aggregates and Organic Matter Fractions in Conventional- and No-Tillage Soils. *Soil Science Society of America Journal*, 58.

Bhandral R, Bolan NS, Saggar S et Hedley MJ. 2007. Nitrogen transformation and nitrous oxide emissions from various types of farm effluents. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 79 : 193-208.

Birch HF. 1958. The effect of soil drying on humus decomposition and nitrogen availability. *Plant and Soil*, 10 : 9-31.

Boeckx P, van Cleemput O et Villaralvo I. 1996. Methane emission from a landfill and the methane oxidising capacity of its covering soil. *Soil Biology and Biochemistry*, 28 : 1397-1405.

Bogner J, Ahmed MA, Diaz C, Faaij A, Gao Q, Hashimoto S, Mareckova K, Pipatti R et Zhang T. 2007. Waste Management. Dans: *Climate Change 2007: Mitigation, Contribution of Working Group III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.

Bogner JE, Spokas KA et Burton EA. 1999. Temporal Variations in Greenhouse Gas Emissions at a Midlatitude Landfill. *Journal of Environmental Quality*, 28 : 278-288.

Bolan NS, Saggar S, Luo JF, Bhandral R et Singh J. 2004. Gaseous emissions of nitrogen from grazed pastures: Processes, measurements and modelling, environmental implications, and mitigation. Dans : Sparks DL éd. *Advances in Agronomy*, Vol 84. p. 37-120.

Börjesson G et Svensson BH. 1997a. Nitrous oxide emissions from landfill cover soils in Sweden. *Tellus B*, 49 : 357-363.

Börjesson G et Svensson BH. 1997b. Seasonal and Diurnal Methane Emissions From a Landfill and Their Regulation By Methane Oxidation. *Waste Management and Research*, 15 : 33-54.

Börjesson G, Sundh I et Svensson B. 2004. Microbial oxidation of CH₄ at different temperatures in landfill cover soils. *FEMS Microbiology Ecology*, 48 : 305-312.

Brady NC et Weil RR. 2008. The Nature and Properties of Soil, 14th edition. Pearson Prentice Hall, Pearson Education Inc. Upper Saddle River, New Jersey, USA, 07458.

Brown S, Beecher N et Carpenter A. 2010. Calculator Tool for Determining Greenhouse Gas Emissions for Biosolids Processing and End Use. Environmental Science and Technology, 44 : 9509-9515.

Burton DL, Zebarth BJ, Gillam KM et MacLeod JA. 2008. Effect of split application of fertilizer nitrogen on N₂O emissions from potatoes. Canadian Journal of Soil Science, 88 : 229-239.

Camberato JJ, Gagnon B, Angers DA, Chantigny MH et Pan WL. 2006. Pulp and paper mill by-products as soil amendments and plant nutrient sources. Canadian Journal of Soil Science, 86 : 641-653.

CANMET. 2005. Pulp and Paper Sludge to Energy – Preliminary Assessment of Technologies. Natural Resources Canada, CANMET Energy. Report (34)0173e479.1., 152 p.

Cantera JLL et Stein LY. 2007. Molecular diversity of nitrite reductase genes (nirK) in nitrifying bacteria. Environmental Microbiology, 9 : 765-776.

Castro MS, Peterjohn WT, Melillo JM, Steudler PA, Gholz HL et Lewis D. 1994. Effects of nitrogen fertilization on the fluxes of N₂O, CH₄, and CO₂ from soils in a Florida slash pine plantation. Canadian Journal of Forest Research, 24 : 9-13.

CEAEQ (Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec). 2012. Détermination des solides totaux et des solides totaux volatils : méthode gravimétrique, MA. 100 - S.T. 1.1, Rév. 2, Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs du Québec, 13 p.

Chantigny MH, Angers DA et Beauchamp CJ. 2000. Active carbon pools and enzyme activities in soils amended with de-inking paper sludge. Canadian Journal of Soil Science, 80 : 99-105.

Chantigny MH, Prévost D, Angers DA, Simard RR et Chalifour F-P. 1998. Nitrous oxide production in soils cropped to corn with varying N fertilization. Canadian Journal of Soil Science, 78 : 589-596.

Chantigny MH, Angers DA, Rochette P, Bélanger G, Massé D et Côté D. 2007. Gaseous Nitrogen Emissions and Forage Nitrogen Uptake on Soils Fertilized with Raw and Treated Swine Manure. *Journal of Environmental Quality*, 36 : 1864-1872.

Chantigny MH, Pelster DE, Perron MH, Rochette P, Angers DA, Parent LE, Masse D et Ziadi N. 2013. Nitrous oxide emissions from clayey soils amended with paper sludges and biosolids of separated pig slurry. *Journal of Environmental Quality*, 42 : 30-39.

Chantigny MH, Angers DA, Bélanger G, Rochette P, Eriksen-Hamel N, Bittman S, Buckley K, Massé D et Gasser M-O. 2008. Yield and Nutrient Export of Grain Corn Fertilized with Raw and Treated Liquid Swine Manure. *Agronomy Journal*, 100.

Chantigny MH, Rochette P, Angers DA, Bittman S, Buckley K, Massé D, Bélanger G, Eriksen-Hamel N et Gasser M-O. 2010. Soil Nitrous Oxide Emissions Following Band-Incorporation of Fertilizer Nitrogen and Swine Manure. *Journal of Environmental Quality*, 39 : 1545-1553.

Chen RR, Senbayram M, Blagodatsky S, Myachina O, Dittert K, Lin XG, Blagodatskaya E et Kuzyakov Y. 2014. Soil C and N availability determine the priming effect: microbial N mining and stoichiometric decomposition theories. *Global Change Biology*, 20 : 2356-2367.

Cossu R, Andreottola G et Muntoni A. 1996. Modeling landfill gas production. Dans : Christensen TH *et al.* eds. *Landfilling of Waste: Biogas*. E&FN Spon, London, p. 237-268.

Culley, J.L.B., 1993. Soil sampling and methods of analysis. Dans : Carter, M.R. ed. *CRC Press Inc.*, Boca Raton, FL, USA. p. 529-539.

Czepiel PM, Mosher B, Crill PM et Harriss RC. 1996. Quantifying the effect of oxidation on landfill methane emissions. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 101 : 16721-16729.

Dalton H. 1977. Ammonia oxidation by the methane oxidising bacterium *Methylococcus capsulatus* strain bath. *Archives of Microbiology*, 114 : 273-279.

De Visscher A, Thomas D, Boeckx P et Van Cleemput O. 1999. Methane Oxidation in Simulated Landfill Cover Soil Environments. *Environmental Science and Technology*, 33 : 1854-1859.

Dobbie KE et Smith KA. 2001. The effects of temperature, water-filled pore space and land use on N₂O emissions from an imperfectly drained gleysol. *European Journal of soil science*, 52 : 667-673.

Dobbie KE et Smith KA. 2003. Nitrous oxide emission factors for agricultural soils in Great Britain: the impact of soil water-filled pore space and other controlling variables. *Global Change Biology*, 9 : 204-218.

Domanski G, Kuzyakov Y, Siniakina SV et Stahr K. 2001. Carbon flows in the rhizosphere of ryegrass (*Lolium perenne*). *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*, 164 : 381-387.

Dunfield P, Knowles R, Dumont R et Moore TR. 1993. Methane production and consumption in temperate and subarctic peat soils: Response to temperature and pH. *Soil Biology and Biochemistry*, 25 : 321-326.

Durocher S. 2015. Évaluation du bilan des émissions de gaz à effet de serre attribuables à l'utilisation de biosolides de papeteries pour le reboisement d'un parc à résidus miniers non acides. Mémoire de maîtrise, Université du Québec à Chicoutimi, Saguenay, 77 p.

Ecoinvent. 2013. Swiss Centre for Life Cycle Inventories. Ecoinvent database version 3.1. Zürich, Suisse.

Elliott A et Mahmood T. 2007. Pretreatment technologies for advancing anaerobic digestion of pulp and paper biotreatment residues. *Water Research*, 41 : 4273-4286.

Emkes H, Coulon F et Wagland S. 2015. A decision support tool for landfill methane generation and gas collection. *Waste Management*, 43 : 307-318.

Environnement Canada. 2015. Rapport d'inventaire national 1990-2013 Sources et puits de gaz à effet de serre au Canada. Sommaire. Environnement Canada, Gatineau, Qc. Canada, 16 p.

Faubert P, Barnabé S, Bouchard S, Côté R et Villeneuve C. 2016. Pulp and paper mill sludge management practices: What are the challenges to assess the impacts on greenhouse gas emissions? *Resources, Conservation and Recycling*, 108 : 107-133.

Faubert P, Lemay Bélisle C, Bertrand N, Bouchard S, Chantigny M, Durocher s, Philippe R, Tremblay P, Ziadi N et Villeneuve C. 2015. La gestion des biosolides de papetières au Québec: quelle serait la meilleure option pour réduire les émissions de gaz à effet de serre? Vecteur environnement, Novembre 2015 : 50-58.

Gagnon B et Ziadi N. 2012. Papermill biosolids and alkaline residuals affect crop yield and soil properties over nine years of continuous application. Canadian Journal of Soil Science, 92 : 917-930.

Gagnon B, Ziadi N, Rochette P, Chantigny MH et Angers DA. 2011. Fertilizer Source Influenced Nitrous Oxide Emissions from a Clay Soil under Corn. Soil Science Society of America Journal, 75 : 595-604.

Garcia J-L, Patel BKC et Ollivier B. 2000. Taxonomic, Phylogenetic, and Ecological Diversity of Methanogenic Archaea. Anaerobe, 6 : 205-226.

Ghosh S et Taylor DC. 1999. Kraft-mill biosolids treatment by conventional and biphasic fermentation. Water Science and Technology, 40 : 169-177.

Gouvernement du Québec. 2012. Le Québec en action vert 2020. Plan d'action 2013-2020 sur les changements climatiques. Phase 1. 55 p.

Grossel A, Nicoullaud B, Bourennane H, Rochette P, Guimbaud C, Chartier M, Catoire V et Hénault C. 2014. Simulating the spatial variability of nitrous oxide emission from cropped soils at the within-field scale using the NOE model. Ecological Modelling, 288 : 155-165.

Guenet B, Neill C, Bardoux G et Abbadie L. 2010. Is there a linear relationship between priming effect intensity and the amount of organic matter input? Applied Soil Ecology, 46 : 436-442.

Hanson PJ, Edwards NT, Garten CT et Andrews JA. 2000. Separating root and soil microbial contributions to soil respiration: A review of methods and observations. Biogeochemistry, 48 : 115-146.

Hao X, Ball B, Culley J, Carter M et Parkin G. 2008. Soil density and porosity. Dans : Carter M et Gregorich E éd. Soil sampling and methods of analysis. CRC Press, Boca Raton, FL, USA., p. 743-759.

Heath LS, Maltby V, Miner R, Skog KE, Smith JE, Unwin J et Upton B. 2010. Greenhouse Gas and Carbon Profile of the U.S. Forest Products Industry Value Chain, supporting information. *Environmental Science and Technology*, 44 : 3999-4005.

Hébert M, Chantigny M, N'Dayegamiye A, Côté C, Gagné M, Martin Y, Whalen JK, Moore H, Proulx S et Ziadi N. 2010. Les engrais de ferme et les matières résiduelles fertilisantes organiques. Dans : CRAAQ éd. Guide de référence en fertilisation - 2e édition. Québec, Qc, Canada, p. 289-344.

Helgason BL, Janzen HH, Chantigny MH, Drury CF, Ellert BH, Gregorich EG, Lemke RL, Pattey E, Rochette P et Wagner-Riddle C. 2005. Toward Improved Coefficients for Predicting Direct N₂O Emissions from Soil in Canadian Agroecosystems. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 72 : 87-99.

IPCC (Intergovernmental panel on climate change). 2006. Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. Institute for Global Environmental Strategies, Hayama, Kanagawa, Japan.

IPCC (Intergovernmental panel on climate change). 2013. Climate change 2013: the physical science basis. Dans: Stocker TF *et al.* eds. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, p. 1535.

IPCC (Intergovernmental panel on climate change). 2014. Climate change 2014: Mitigation of climate change. Dans: Edenhofer O *et al.* eds. Contribution of working group III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge university press, cambridge, united kingdom and new york, ny, USA.

Isaac RA et Johnson WC. 1976. Determination of total nitrogen in plant tissue, using a block digester. *Association of Official Analytical Chemists Journal*, 59 : 98-100.

Ishii K et Furuichi T. 2013. Estimation of methane emission rate changes using age-defined waste in a landfill site. *Waste Management*, 33 : 1861-1869.

Kelly RJ, Shearer BD, Kim J, Goldsmith CD, Hater GR et Novak JT. 2006. Relationships between analytical methods utilized as tools in the evaluation of landfill waste stability. *Waste Management*, 26 : 1349-1356.

Knowles R. 1982. Denitrification. *Microbiological Reviews*, 46 : 43-70.

Koerner GR et Koerner RM. 2006. Long-term temperature monitoring of geomembranes at dry and wet landfills. *Geotextiles and Geomembranes*, 24 : 72-77.

Kuzyakov Y. 2006. Sources of CO₂ efflux from soil and review of partitioning methods. *Soil Biology and Biochemistry*, 38 : 425-448.

Kuzyakov Y. 2010. Priming effects: Interactions between living and dead organic matter. *Soil Biology and Biochemistry*, 42 : 1363-1371.

Kuzyakov Y et Bol R. 2006. Sources and mechanisms of priming effect induced in two grassland soils amended with slurry and sugar. *Soil Biology and Biochemistry*, 38 : 747-758.

Larose M et Hébert M. 2014. Bilan 2012 du recyclage des matières résiduelles fertilisantes. Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs, Québec, 40 p.

Le Mer J et Roger P. 2001. Production, oxidation, emission and consumption of methane by soils: A review. *European Journal of Soil Biology*, 37 : 25-50.

Lessard R, Rochette P, Gregorich EG, Pattey E et Desjardins RL. 1996. Nitrous Oxide Fluxes from Manure-Amended Soil under Maize. *Journal of Environmental Quality*, 25 : 1371-1377.

Linn DM et Doran JW. 1984. Effect of Water-Filled Pore Space on Carbon Dioxide and Nitrous Oxide Production in Tilled and Nontilled Soils. *Soil Science Society of America Journal*, 48 : 1267-1272.

Liu BB, Wei Q, Zhang B et Bi J. 2013. Life cycle GHG emissions of sewage sludge treatment and disposal options in Tai Lake Watershed, China. *Science of the Total Environment*, 447 : 361-369.

Lou X et Nair J. 2009. The impact of landfilling and composting on greenhouse gas emissions—a review. *Bioresource Technology*, 100 : 3792-3798.

Mahmood T et Elliott A. 2006. A review of secondary sludge reduction technologies for the pulp and paper industry. *Water Research*, 40 : 2093-2112.

Mandernack KW, Kinney CA, Coleman D, Huang Y-S, Freeman KH et Bogner J. 2000. The biogeochemical controls of N₂O production and emission in landfill cover soils: the role of methanotrophs in the nitrogen cycle. *Environmental Microbiology*, 2 : 298-309.

MAPAQ (Ministère de l'Agriculture, des Pêcheries et de l'Alimentation - Saguenay-Lac-Saint-Jean) 2011. Statistiques agricoles 2010 de la région Saguenay-Lac-Saint-Jean. 18 p. Consulté le 13 avril. 2016. http://www.mapaq.gouv.qc.ca/fr/Publications/Statistiques_agricoles_2010_region_Saguenay_Lac_Saint-Jean.pdf.

Mata-Alvarez J, Dosta J, Fonoll X, Romero M, Peces M et Astals S. 2013. Anaerobic co-digestion : a review of achievements and perspectives. Dans: Compte rendu du World Congress on Anaerobic Digestion, Espagne, du 25 au 28 juin 2013. Santiago de Compostela.

MDDEFP (Ministère du Développement durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs). 2012. Les fabriques de pâtes et papiers au Québec - Procédés, rejets et réglementation. Gouvernement du Québec, Québec, 18 p.

MDDELCC (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques). 2015. Bilan annuel de conformité environnementale 2012. Secteur des pâtes et papiers. Gouvernement du Québec, Québec, 74 p.

MDDEP (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs). 2011. Politique québécoise de gestion des matières résiduelles. Gouvernement du Québec, Québec, 13 p.

Meyer T et Edwards EA. 2014. Anaerobic digestion of pulp and paper mill wastewater and sludge. *Water Research*, 65 : 321-349.

Moore TR et Dalva M. 1993. The influence of temperature and water table position on carbon dioxide and methane emissions from laboratory columns of peatland soils. *Journal of Soil Science*, 44 : 651-664.

Moreau A, Montplaisir D, Sparling R et Barnabé S. 2015. Hydrogen, ethanol and cellulase production from pulp and paper primary sludge by fermentation with *Clostridium thermocellum*. *Biomass and Bioenergy*, 72 : 256-262.

Mosher BW, Czepiel PM, Harriss RC, Shorter JH, Kolb CE, McManus JB, Allwine E et Lamb BK. 1999. Methane Emissions at Nine Landfill Sites in the Northeastern United States. *Environmental Science and Technology*, 33 : 2088-2094.

NCASI (National Council for Air and Stream Improvement). 2005. Calculation Tools for Estimating Greenhouse Gas Emissions from Pulp and Paper Mills. Report Version 1.1. A Project of the Climate Change Working Group of the International Council of Forest and Paper Associations (ICFPA). Research Triangle Park, NC, USA., 140 p.

Nesbit SP et Breitenbeck GA. 1992. A laboratory study of factors influencing methane uptake by soils. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 41 : 39-54.

Parkin TB. 1987. Soil Microsites as a Source of Denitrification Variability. *Soil Science Society of America Journal*, 51 : 1194-1199.

Pelster DE, Chantigny MH, Rochette P, Angers DA, Rieux C et Vanasse A. 2012. Nitrous oxide emissions respond differently to mineral and organic nitrogen sources in contrasting soil types. *Journal of Environmental Quality*, 41 : 427-435.

Petersen S, Schjonning P, Thomsen I et Christensen B. 2008. Nitrous oxide evolution from structurally intact soil as influenced by tillage and soil water content. *Soil Biology and Biochemistry*, 40 : 967-977.

Primeau C. 2014. Modes de gestion des biosolides des usines de pâtes et papiers au Québec : analyse comparative. Mémoire de maîtrise, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, 94 p.

Quinn G P et Keough M J. 2002. Comparing group or treatments – analysis of variance. Dans : Quinn G P et Keough M J. *Experimental Design and Data analysis for Biologists*. Cambridge University Press, Cambridge, UK. p.173-207.

Raymond R, Mailloux A et Dubé A. 1965. Pédologie de la région du Lac-Saint-Jean. Ministère de l'Agriculture et de la Colonisation. Bulletin technique No 11, 157 p.

RECYC-QUÉBEC. 2014. Bilan 2012 de la gestion des matières résiduelles au Québec. Québec, 31 p.

Rinne J, Pihlatie M, Lohila A, Thum T, Aurela M, Tuovinen J-P, Laurila T et Vesala T. 2005. Nitrous Oxide Emissions from a Municipal Landfill. *Environmental Science and Technology*, 39 : 7790-7793.

Rochette P et Hutchinson GL. 2005. Measurement of soil respiration in situ : chamber techniques. Dans : Hatfield J et Baker JM éd. *Micrometeorology in agricultural systems*. ASA monograph #47. American Society of Agronomy, Madison, WI. p. 247-286.

Rochette P et Bertrand N. 2008. Soil sampling and methods of analysis. Dans : Carter M et Gregorich EG éd. *CRC Press*, Boca Raton, FL, USA. p. 851-861.

Rochette P, Desjardins RL et Pattey E. 1991. Spatial and temporal variability of soil respiration in agricultural fields. *Canadian Journal of Soil Science*, 71 : 189-196.

Rochette P, Angers DA et Côté D. 2000. Soil Carbon and Nitrogen Dynamics Following Application of Pig Slurry for the 19th Consecutive Year I. Carbon Dioxide Fluxes and Microbial Biomass Carbon. *Soil Science Society of America Journal*, 64 : 1389-1395.

Rochette P, Angers DA, Chantigny MH et Bertrand N. 2008a. Nitrous Oxide Emissions Respond Differently to No-Till in a Loam and a Heavy Clay Soil. *Soil Science Society of America Journal*, 72 : 1363-1369.

Rochette P, Angers DA, Chantigny MH, Bertrand N et Côté D. 2004. Carbon Dioxide and Nitrous Oxide Emissions following Fall and Spring Applications of Pig Slurry to an Agricultural Soil. *Soil Sci Soc Am J*, 68 : 1410-1420.

Rochette P, Angers DA, Chantigny MH, Gagnon B et Bertrand N. 2008b. N₂O fluxes in soils of contrasting textures fertilized with liquid and solid dairy cattle manures. *Canadian Journal of Soil Science*, 88 : 175-187.

Rochette P, Worth DE, Lemke RL, McConkey BG, Pennock DJ, Wagner-Riddle C et Desjardins RJ. 2008c. Estimation of N₂O emissions from agricultural soils in Canada. I. Development of a country-specific methodology. *Canadian Journal of Soil Science*, 88 : 641-654.

Ryden JC. 1983. Denitrification loss from a grassland soil in the field receiving different rates of nitrogen as ammonium nitrate. *Journal of Soil Science*, 34 : 355-365.

Sitaula BK, Hansen S, Sitaula JIB et Bakken LR. 2000. Methane oxidation potentials and fluxes in agricultural soil : Effects of fertilisation and soil compaction. *Biogeochemistry*, 48 : 323-339.

Spokas K, Graff C, Morcet M et Aran C. 2003. Implications of the spatial variability of landfill emission rates on geospatial analyses. *Waste Management*, 23 : 599-607.

Stein LY. 2011. Surveying N₂O-producing pathways in bacteria. Dans : Klotz MG éd. *Research on nitrification and related processes, part 1- methods in enzymology*. Academic Press, Michigan, p. 131-152.

Stein LY et Klotz MG. 2011. Nitrifying and denitrifying pathways of methanotrophic bacteria. *Biochemical Society Transactions*, 39 : 1826-1831.

Swedish EPA (Environmental Protection Agency). 2015. National Inventory Report Sweden 2015. Greenhouse Gas Emission Inventories 1990-2013. Submitted Under the United Nations Framework Convention on Climate Change and the Kyoto Protocol, Stockholm, Sweden, 505 p.

SYLVIS. 2009. The biosolids emissions assessment model (BEAM): A method for determining greenhouse gas emissions from Canadian biosolids management practices. New Westminster, Colombie-Britannique, 178 p.

Thangarajan R, Bolan NS, Tian G, Naidu R et Kunhikrishnan A. 2013. Role of organic amendment application on greenhouse gas emission from soil. *Science of the Total Environment*, 465 : 72-96.

Themelis NJ et Ulloa PA. 2007. Methane generation in landfills. *Renewable Energy*, 32 : 1243-1257.

Thompson R et Pain B. 1989. Denitrification from cattle slurry applied to grassland. Dans : Hansen J et Henriksen K éd. *Nitrogen in organic wastes applied to soils*. Academic Press, London, p. 247-260.

Tiedje J. 1988. Ecology of denitrification and dissimilatory nitrate reduction to ammonium. Dans : Zehnder AJB, éd. *Biology of anaerobic microorganisms*. Wiley, California, p. 179–244.

Tremblay N, Chabot V, N'Dayegamiye A, Ziadi N, Chantigny M, Rochette P, Ravenelle M, Tremblay G et Guertin S-P. 2010. La gestion de l'azote. Dans : CRAAQ éd. *Guide de référence en fertilisation* - 2e édition. Québec, p. 139-165.

van Groenigen JW, Kuikman PJ, de Groot WJM et Velthof GL. 2005. Nitrous oxide emission from urine-treated soil as influenced by urine composition and soil physical conditions. *Soil Biology and Biochemistry*, 37 : 463-473.

van Groenigen JW, Kasper GJ, Velthof GL, van den Pol-van Dasselaar A et Kuikman PJ. 2004. Nitrous oxide emissions from silage maize fields under different mineral nitrogen fertilizer and slurry applications. *Plant and Soil*, 263 : 101-111.

van Groenigen JW, Velthof GL, Oenema O, van Groenigen KJ et Van Kessel C. 2010. Towards an agronomic assessment of N₂O emissions: a case study for arable crops. *European Journal of soil science*, 61 : 903-913.

Velthof G, Kuikman P et Oenema O. 2003. Nitrous oxide emission from animal manures applied to soil under controlled conditions. *Biology and Fertility of Soils*, 37 : 221-230.

Velthof GL, Oenema O, Postma R et Beusichem ML. 1996. Effects of type and amount of applied nitrogen fertilizer on nitrous oxide fluxes from intensively managed grassland. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 46 : 257-267.

Villeneuve C et Dessureault P. 2011. Biosolides municipaux Quelle est la meilleure option pour le climat? *Vecteur environnement*, Septembre 2011 : 8-12.

Wrage N, Velthof GL, van Beusichem ML et Oenema O. 2001. Role of nitrifier denitrification in the production of nitrous oxide. *Soil Biology and Biochemistry*, 33 : 1723-1732.

Zadoks JC, Chang TT et Konzak CF. 1974. A decimal code for the growth stages of cereals. *Weed Research*, 14 : 415-421.

Zavala MAL et Funamizu N. 2005. Effect of moisture content on the composting process in a biotoilet system. *Compost Science and Utilization*, 13 : 208-216.

Zebarth BJ, Rochette P et Burton DL. 2008. N₂O emissions from spring barley production as influenced by fertilizer nitrogen rate. *Canadian Journal of Soil Science*, 88 : 197-205.

Zhang H, He P et Shao L. 2009. N₂O emissions at municipal solid waste landfill sites: Effects of CH₄ emissions and cover soil. *Atmospheric Environment*, 43 : 2623-2631.

Ziadi N, Belanger G, Cambouris AN, Tremblay N, Nolin MC et Claessens A. 2008. Relationship between phosphorus and nitrogen concentrations in spring wheat. *Agronomy Journal*, 100 : 470-470.

Zibilsky LM. 1987. Dynamics of nitrogen and carbon in soil during papermill sludge decomposition. *Soil Science*, 143 : 26-33.

